

(51)Int.Cl.⁵

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

C 0 9 K 11/06

Z 9159-4H

H 0 5 B 33/14

審査請求 未請求 請求項の数10 O L (全 48 頁)

(21)出願番号 特願平5-290207

(22)出願日 平成5年(1993)11月19日

(31)優先権主張番号 特願平4-311889

(32)優先日 平4(1992)11月20日

(33)優先権主張国 日本(JP)

(71)出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内3丁目1番1号

(72)発明者 松浦 正英

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内

(72)発明者 東海林 弘

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内

(72)発明者 東 久洋

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株式会社内

(74)代理人 弁理士 大谷 保

最終頁に続く

(54)【発明の名称】 白色有機エレクトロルミネッセンス素子

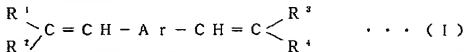
(57)【要約】

【目的】 発光効率が高く、かつ発光安定性に優れた白色有機エレクトロルミネッセンス素子を提供すること。

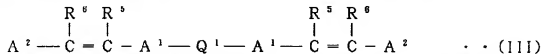
【構成】 発光層が固体状態の蛍光ピーク波長が380nm以上480nm未満である有機化合物を含有する第一発光層と、固体状態の蛍光ピーク波長が480nm以上580nm未満である有機化合物を含有する第二発光層とが透明電極又は陽極側から順次積層された積層構造からなり、かつ溶液状態での蛍光ピーク波長が580nm以上650nm以下である有機化合物を、有機化合物層の少なくとも一層に、その層を形成する有機化合物に対して0.1~10モル%の割合で含有させた白色有機エレクトロルミネッセンス素子である。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも一方が透明もしくは半透明な一対の電極間に発光層を少なくとも含む有機化合物層を挟持してなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層は固体状態の蛍光ピーク波長が380nm以上480nm未満である有機化合物を含有する第一発光層と、固体状態の蛍光ピーク波長が480nm以上580nm未満である有機化合物を含有する第二発光層とが透明電極又は陽極側から順次積層された積層構造から



【式中、R¹～R⁴は、それぞれ水素原子、炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数6～18のアリール基、置換もしくは無置換の芳香族複素環式基、置換もしくは無置換のシクロヘキシル基、置換もしくは無置換の炭素数6～18のアリールオキシ基を示す。ここで、置換基は炭素数1～6のアルキル基、炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、炭素数6～18のアリールオキシ基、炭素数1～6のアシル基、炭素数1～6のアシルオキシ基、カルボキシル基、ステリル基、炭素数6～20のアリールカルボニル基、炭素数6～20のアリールオキシカルボニル基、炭素数1～6のアルコキシカルボニル基、ビニル基、アニノカルボニル基、カルバモイル基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子を示す。これらの置換基は単一でも複数でもよい。また、R¹～R⁴は同一でも、また互いに異なってもよく、R¹とR²及びR³とR⁴は互いに置換している基と結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。Arは置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基を表わし、単一置換されていても、複数置換されていてもよく、また結合部位は、オルト、



【式中、A¹は置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基又は二価の芳香族複素環式基を示す。結合位置はオルト、メタ、パラのいずれでもよい。A²は置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基又は一価の芳香族複素環式基を示す。R⁵及びR⁶は、それぞれ水素原子、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基、シクロヘキシル基、一価の芳香族複素環式基、炭素数1～10のアルキル基、炭素数7～20のアラルキル基又は炭素数1～10のアルコキシ基を示す。なお、R⁵、R⁶は同一でも異なってもよい。ここで、置換基とは、アルキル基、アリールオキシ基、アミノ基

なり、かつ溶液状態での蛍光ピーク波長が580nm以上650nm以下である有機化合物を、上記第一発光層、第二発光層及びその他の有機化合物層の中から選ばれた少なくとも一層に、その層を形成する有機化合物に対し、0.1～10mol%の割合で含有させたことを特徴とする白色有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項2】 固体状態の蛍光ピーク波長が380nm以上480nm未満である有機化合物が、一般式(I)【化1】

パラ、メタいずれでもよい。なお、置換基は前記と同じである。また、アリール基の置換基同士が結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。但し、Arが無置換フェニレンの場合、R¹～R⁴はそれぞれ炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアラルキル基、置換もしくは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基、アリールオキシ基より選ばれたものである。】で表される芳香族メチリデン化合物である請求項1記載の白色有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項3】 固体状態の蛍光ピーク波長が380nm以上480nm未満である有機化合物が、一般式(II) A—Q—B ……(II)

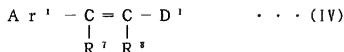
【式中、A及びBは、それぞれ上記一般式(I)で表される化合物から1つの水素原子を除いた一価基を示し、同一であっても異なってもよい。また、Qは共役系を切る二価基を示す。】で表される芳香族メチリデン化合物である請求項1記載の白色有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項4】 固体状態の蛍光ピーク波長が380nm以上480nm未満である有機化合物が、一般式(III)【化2】

あり、該置換基は単一でも複数でもよい。また、R⁵の各置換基はA¹と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよく、同様にR⁶の各置換基はA²と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。また、Q¹は、共役を切る二価基を表す。】で表される芳香族メチリデン化合物である請求項1記載の白色有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項5】 固体状態の蛍光ピーク波長が480nm以上580nm未満である有機化合物が、8-ヒドロキシキノリンまたはその誘導体の金属錯体である請求項1

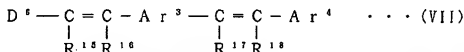
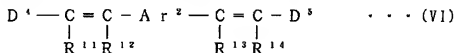
【請求項6】 第一発光層及び／又は第二発光層に、一般式 (IV) 及び (V)



〔式中、Ar¹ は炭素数6～20のアリール基を示す。R⁷～R¹⁰は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数6～20のアリール基を示す。D¹～D³ は、それぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数6～20のアリール基又は炭素数10～30の縮合多環族基を示す。ここで、Ar¹、R⁷～R¹⁰は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～10のアリールオキシ基、

炭素数6～10のアラルキル基又は炭素数1～20の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていてもよい。〕で表されるスチルベン誘導体の中から選ばれた少なくとも一種を含有させてなる請求項1記載の白色有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項7】 第一発光層及び／又は第二発光層に、一般式 (VI) 及び(VII)

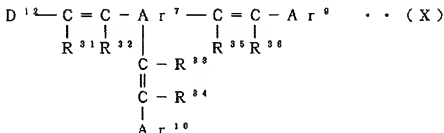
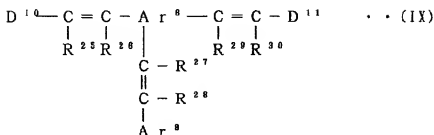
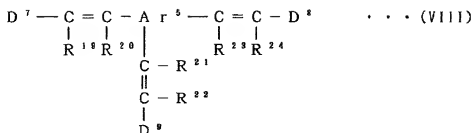


〔式中、Ar² 及び Ar³ は、それぞれ独立に炭素数6～20のアリーレン基を示し、Ar⁴ は炭素数6～20のアリール基を示す。R¹¹～R¹⁸は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数6～20のアリール基を示す。ここで、Ar²～Ar⁴、R¹¹～R¹⁸は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～10のアリールオキシ基、炭素数6～10のアラルキル基又は炭素数1～20の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていても

よい。D⁴～D⁶ は、それぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数6～20のアリール基又は炭素数10～30の縮合多環族基を示す。〕で表されるジスチルアリーレン誘導体の中から選ばれた少なくとも一種を含有させてなる請求項1記載の白色有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項8】 第一発光層及び／又は第二発光層に、一般式 (VIII) ～ (X)

〔化5〕



〔式中、 $A r^5 \sim A r^7$ は、それぞれ独立に炭素数 6～24 の 3 価の芳香族環基を示し、 $A r^8 \sim A r^{10}$ は、それぞれ独立に炭素数 6～20 のアリール基を示す。 $R^{19} \sim R^{36}$ は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数 6～20 のアリール基を示す。 $D^7 \sim D^{12}$ はそれぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数 6～20 のアリール基又は炭素数 10～30 の縮合多環族基を示す。ここで、 $A r^5 \sim A r^7$ 、 $R^{19} \sim R^{36}$ は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数 1～10 のアルキル基、炭素数 1～10 のアルコキシ基、炭素数 6～10 のアリールオキシ基、炭素数 6～10 のラルキル基又は炭素数 1～20 の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていてもよい。〕で表されるトリスチルアリレン誘導体の中から選ばれた少なくとも一種を含有させてなる請求項 1 記載の白色有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 9】 第一発光層と第二発光層において、陰極側に近い発光層の方が、電子輸送能力が大である請求項 1 記載の白色有機エレクトロルミネッセンス素子。

【請求項 10】 第二発光層の膜厚が、第一発光層の膜厚以上である請求項 1 記載の白色有機エレクトロルミネッセンス素子。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は新規な白色有機エレクトロルミネッセンス素子に関し、さらに詳しくは、発光効率が高く、かつ発光安定性に優れた白色発光を呈する有

【0002】

【従来の技術】 エレクトロルミネッセンス素子（EL 素子）は、自己発光のため視認性が高く、かつ完全固体素子であるため、耐衝撃性に優れるという特徴を有している。そのため、現在、無機又は有機化合物を用いた様々な EL 素子が提案され、かつ、実用化が試みられている。これらの素子のうち、有機 EL 素子は印加電圧を大幅に低下させることができるので、各種材料・素子の開発が進められている。さらに、現在用いられているバックライトやディスプレイなどの表示素子の軽量化にも有効である。白色発光する有機 EL 素子については、従来、次のような技術の開示がなされているが、以下のような問題点が多々あった。例えば、ヨーロッパ公開特許第 0 3 9 0 5 5 1 号公報では、キャリアをキャリア界面の蓄積によるトンネリング注入によって取り込むため白色発光するための域値電圧が存在し、その域値以下においては白色ではないため階調表示ができない。特開平 3-2 3 0 5 8 4 号公報では、二色の蛍光物の混合発光であるため良好な白色にはならない。特開平 2-2 2 0 3 9 0 号公報では、白色発光を呈するが、印加電圧 30V で輝度 110 c d / m² であり、駆動電圧が高い割には発光効率が低い。特開平 4-5 1 4 9 1 号公報では、端面発光構造であり面全体としての用途には不適である。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は、このような

ともに、発光効率が高く、かつ発光安定性に優れた白色発光を呈する有機ＥＬ素子を提供することを目的としてなされたものである。

【０００４】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、高い発光効率及び発光安定性を有する白色有機ＥＬ素子を開発すべく鋭意研究を重ねた結果、正孔と電子との再結合領域を第一発光層と第二発光層との界面領域として、第一発光層及び第二発光層それぞれに、固体状態の蛍光ピーク波長が異なる特定の範囲にある有機化合物を含有させ、かつ第一発光層、第二発光層及びその他の有機化合物層の中から選ばれた少なくとも一層に、溶液状態で蛍光ピーク波長が特定の範囲にある有機化合物を含有させることにより、従来の有機ＥＬ素子の特性を維持するとともに、発光効率が高く、かつ発光安定性に優れた白色発光を呈する有機ＥＬ素子が得られることを見出した。本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。すなわち、本発明は、少なくとも一方が透明もしくは半透明な一對の電極間に発光層を少なくとも含む有機化合物層を挟持してなる有機エレクトロルミネッセンス素子において、該発光層は固体状態の蛍光ピーク波長が３８０ｎｍ以上４８０ｎｍ未満である有機化合物を含有する第一発光層と、固体状態の蛍光ピーク波長が４８０ｎｍ以上５８０ｎｍ未満である有機化合物を含有する第二発光層とが透明電極又は陽極側から順次積層された積層構造からなり、かつ溶液状態で蛍光ピーク波長が５８０ｎｍ以上６５０ｎｍ以下である有機化合物を、上記第一発光層、第二発光層及びその他の有機化合物層の中から選ばれた少なくとも一層に、その層を形成する有機化合物に対し、０．１～１０モル％の割合で含有させたことを特徴とする白色有機エレクトロルミネッセンス素子を提供するものである。

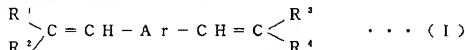
【０００５】本発明の白色有機ＥＬ素子は、第一発光層と第二発光層の２層の発光層に特徴がある。この第一発光層には、固体状態の蛍光ピーク波長が３８０ｎｍ以上４８０ｎｍ未満（青色系）、好ましくは４２０ｎｍ以上４７５ｎｍ未満である有機化合物が用いられ、第二発光層には、固体状態の蛍光ピーク波長が４８０ｎｍ以上

８０ｎｍ未満（緑色系）、好ましくは４９０ｎｍ以上５６０ｎｍ未満である有機化合物が用いられる。さらに、上記発光層及び他の有機化合物層の中から選ばれた少なくとも一層に、溶液状態で蛍光ピーク波長が５８０ｎｍ以上６５０ｎｍ以下（赤色系）、好ましくは５８５ｎｍ以上６２０ｎｍ以下である有機化合物を、その層を形成する有機化合物に対して０．１～１０モル％、好ましくは０．５～５モル％の割合で含有させたことを特徴とする。この０．１～１０モル％というのは、濃度消光を生じないための濃度範囲である。なお、蛍光スペクトルにおいて、ピークが複数ある化合物においては、上記のそれぞれの波長全面域に少なくとも一つのピークをもっていれらばよい。

【０００６】本発明の白色有機ＥＬ素子による白色光は、上記第一発光層及び第二発光層及び混合成分からの発光の重ね合わせ（すなわち、特定の蛍光ピーク波長を有する３種類の上記有機化合物の３原色発光の重ね合わせ）により得ることができる。なお、図１に白色光の定義をＣＩＥ座標にて示した。ここで、第一発光層に用いる有機化合物は、特に限定されず、例えば特開３－２３１９７０号公報あるいは国際公開特許ＷＯ９２／０５１３１１号公報、特願平５－１７０３５４号明細書、特願平５－１２９４３８号明細書に記載されている有機化合物の中で、上記第一発光層の蛍光条件を満足するものが挙げられる。好ましいものとしては、特開３－２３１９７０号公報、国際公開特許ＷＯ９２／０５１３１１号公報、特願平５－１７０３５４号明細書に記載されている上記第一発光層の蛍光条件を満たすものと、特願平５－１２９４３８号明細書に記載されている適当な化合物との組合せ、さらには後述する正孔注入輸送層に用いる化合物のなかで、上記第一発光層の蛍光条件を満足するものを挙げるることができる。次に、特開３－２３１９７０号公報、国際公開特許ＷＯ９２／０５１３１１号公報に記載されている上記第一発光層の蛍光条件を満たす化合物としては、一般式（１）

【０００７】

【化６】



【０００８】【式】中、 $R^1 \sim R^4$ は、それぞれ水素原子、炭素数１～６のアシル基、炭素数１～６のアルコキシ基、炭素数７～１８のアラルキル基、置換もしくは無置換の炭素数６～１８のアリール基、置換もしくは無置換の芳香族酸素環式基、置換もしくは無置換のシクロヘキシル基、置換もしくは無置換の炭素数６～１８のアリールオキシ基、置換もしくは無置換のシリル基を示す。ここで、置換基は炭素数１～６のアルキル基、炭素

数、炭素数６～１８のアリールオキシ基、炭素数１～６のアシル基、炭素数１～６のアシルオキシ基、カルボキシ基、スチリル基、炭素数６～２０のアリールカルボニル基、炭素数６～２０のアリールオキシカルボニル基、炭素数１～６のアルコキシカルボニル基、ビニル基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子を示す。これらの置換基は単一でも複数でもよい。また、 $R^1 \sim R$

R² 及び R³ と R⁴ は互いに置換している基と結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。A^r は置換もしくは無置換の炭素数 6～20 のアリレン基を表わし、単一置換されていても、複数置換されていてもよく、また結合部位は、オルト、パラ、メタいずれでもよい。なお、置換基は前記と同じである。また、アリレン基の置換基同士が結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。但し、A^r が無置換フェニレンの場合、R¹～R⁴ は、それぞれ炭素数 1～6 のアルコキシ基、炭素

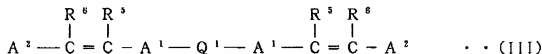
数 7～18 のアラルキル基、置換もしくは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基、アリールオキシ基より選ばれたものである。〕で表される芳香族メチリデン化合物、一般式 (II)



〔式中、A 及び B は、それぞれ上記一般式 (I) で表される化合物から 1 つの水素原子を除いた一価基を示し、同一であっても異なってもよい。また、Q は共役系を切る二価基を示す。〕で表される芳香族メチリデン化合物及び一般式 (III)



【化7】



【0010】〔式中、A¹ は置換もしくは無置換の炭素数 6～20 のアリレン基又は二価の芳香族複素環式基を示す。結合位置はオルト、メタ、パラのいずれでもよい。A² は置換もしくは無置換の炭素数 6～20 のアリレン基又は一価の芳香族複素環式基を示す。R⁵ 及び R⁶ は、それぞれ水素原子、置換もしくは無置換の炭素数 6～20 のアリール基、シクロヘキシル基、一価の芳香族複素環式基、炭素数 1～10 のアルキル基、炭素数 7～20 のアラルキル基又は炭素数 1～10 のアルコキシ基を示す。なお、R⁵、R⁶ は同一でも異なってもよい。ここで、置換基とは、アルキル基、アリールオキシ基、アミノ基又はこれらの基を有するもしくは有しないフェニル基であり、該置換基は単一でも複数でもよい。R⁵ の各置換基は A¹ と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよく、同様に R⁶ の各置換基は A² と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。また、Q¹ は前記と同じである。〕で表される芳香族メチリデン化合物が挙げられる。

【0011】ここで、一般式 (I) 中の R¹～R⁴ は、前述の如く同一でも異なってもよく、それぞれ水素原子、炭素数 1～6 のアルキル基（メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、イソヘキシル基）、炭素数 1～6 のアルコキシ基（メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等）、炭素数 7～18 のアラルキル基（ベンジル基、フェネチル基等）、炭素数 6～18 のアリール基（フェニル基、ビフェニル基、ナフチル基等）、シクロヘキシル基、芳香族複素環式基（ピリジル基、キノリル基）、炭素数 6～18 のアリールオキシ基（フェノキシ基、ビフェニルオキシ基、ナフチルオキシ基等）を示す。

【0012】また、R¹～R⁴ は、これらに置換基の結

換基含有フェニル基、置換基含有アラルキル基、置換基含有シクロヘキシル基、置換基含有ビフェニル基、置換基含有ナフチル基を示す。ここで、置換基は炭素数 1～6 のアルキル基、炭素数 1～6 のアルコキシ基、炭素数 7～18 のアラルキル基、炭素数 6～18 のアリールオキシ基、炭素数 1～6 のアルキル基、炭素数 1～6 のアルコキシカルボニル基、炭素数 6～20 のアリールオキシカルボニル基、炭素数 1～6 のアルコキシカルボニル基、フェニル基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、フェニル基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子であり、複数置換されていてもよい。したがって、例えば、置換基含有アラルキル基は、アルキル基置換アラルキル基（メチルベンジル基、メチルフェネチル基等）、アルコキシ基置換アラルキル基（メトキシベンジル基、エトキシフェネチル基等）、アリールオキシ基置換アラルキル基（フェノキシベンジル基、ナフチルオキシフェネチル基等）、フェニル基置換アラルキル基（フェニルフェネチル基等）、上記置換基含有フェニル基は、アルキル基置換フェニル基（トリル基、ジメチルフェニル基、エチルフェニル基など）、アルコキシ基置換フェニル基（メトキシフェニル基、エトキシフェニル基など）アリールオキシ基置換フェニル基（フェノキシフェニル基、ナフチルオキシフェニル基等）あるいはフェニル基置換フェニル基（つまり、ビフェニル基）である。また、置換基含有シクロヘキシル基は、アルキル基置換シクロヘキシル基（メチルシクロヘキシル基、ジメチルシクロヘキシル基、エチルシクロヘキシル基等）、アルコキシ基置換シクロヘキシル基（メトキシシクロヘキシル基、エトキシシクロヘキシル基等）あるいはアリールオキシ基置換シクロヘキシル基（フェノキシシクロヘキシル基、ナフチルオキシシクロヘキシル基）、フェニル基置換シクロヘキシル基（フェニルシクロヘキシル基）である。置換基含有ナフチル基は、アル

フチル基等)、アルコキシ基置換ナフチル基(メトキシナフチル基、エトキシナフチル基等)あるいはアリーロキシ基置換ナフチル基(フェノキシナフチル基、ナフチルオキシナフチル基)、フェニル基置換ナフチル基(フェニルナフチル基)である。

【0013】上記R¹～R⁴としては、上述したもののうち、それぞれ炭素数1～6のアルキル基、アリーロキシ基、フェニル基、ナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基が好ましい。これらは置換あるいは無置換のいずれでもよい。また、R¹～R⁴は同一でも、また互いに異なっているいてもよい。R¹とR²及びR³とR⁴は互いに置換している基と結合して、置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。

【0014】一方、一般式(I)中のArは置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリーレン基を表わし、置換もしくは無置換のフェニレン基、ビフェニレン基、p-テルフェニレン基、ナフチレン基、ターフェニレン基、ナフタレンジル基、アントラセンジル基、フェナントレンジル基、フェナレンジル基等のアリーレン基であり、無置換でも置換されていてもよい。又、メチリディン(=C=C(H)-)の結合位置はオルト、メタ、パラ等どこでもよい。但し、Arが無置換フェニレンの場合、R¹～R⁴は炭素数1～6のアルコキシ基、炭素数7～18のアルキル基、置換あるいは無置換のナフチル基、ビフェニル基、シクロヘキシル基、アリーロキシ基より選ばれたものである。置換基はアルキル基(メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、イソヘキシル基等)、アルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ

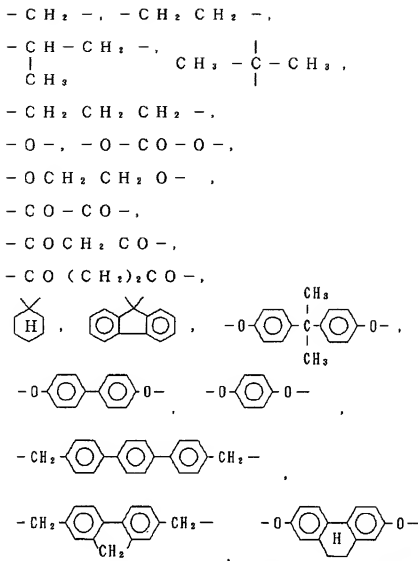
基、ブチルオキシ基、イソブチルオキシ基、sec-ブチルオキシ基、t-ブチルオキシ基、イソペンチルオキシ基、t-ペンチルオキシ基)、アリーロキシ基(フェノキシ基、ナフチルオキシ基等)、アシル基(ホルミル基、アセチル基、プロピオニル基、ブチリル基等)、アシルオキシ基、アラキル基(ベンジル基、フェネチル基等)、フェニル基、水酸基、カルボキシル基、アニリノカルボニル基、カルバモイル基、アリーロキシカルボニル基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、プトキシカルボニル基、ニトロ基、ハロゲン原子であり、単一置換でも複数置換されていてもよい。

【0015】前記一般式(I)で表わされるメチリディン芳香族化合物は、1分子中に2つのメチリディン(=C=C(H)-)基を有し、このメチリディン基の幾何異性によって、4通りの組み合わせ、すなわち、シス-シス、トランス-シス、シス-トランス及びトランス-トランスの組み合わせがある。本発明のEL素子における第一発光層は、それらのいずれのものであってもよいし、幾何異性体の混合したものでもよい。特に好ましくは、全てトランス体のものである。また、上記置換基は、置換基の間で結合し、置換、無置換の飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。

【0016】一般式(II)におけるA及びBは、それぞれ上記一般式(I)で表される化合物から1つの水素原子を除いた一価基を示し、同一であっても異なってもよいものである。ここで、一般式(II)におけるQは共役系を切る二価基を示す。ここで、共役とは、π電子の非極在性によるもので、共役二重結合あるいは不対電子又は孤立電子対によるものを含む。Qの具体例としては、

【0017】

【化8】



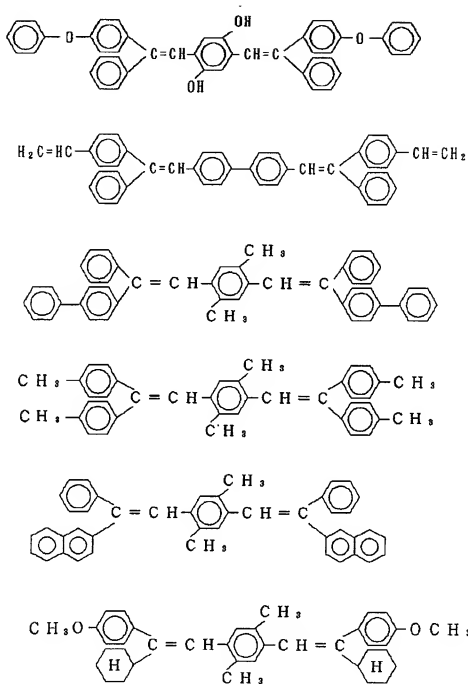
【0018】が挙げられる。このように共役系を切る二価の基を用いる理由は、上記で示されるAあるいはB（即ち、一般式(I)の化合物）を、単独で本発明の有機EL素子として用いた場合に得られるEL発光色と、一般式(II)で表わされる化合物を本発明の有機EL素子として用いた場合に得られるEL発光色とが変わらぬようにするためである。つまり、一般式(I)又は一般式(II)で表わされる第一発光層が、短波長化あるいは長波長化したりすることはないようにするためである。また、共役系を切る二価基で接続するとガラス転移温度(T_g)は、上昇することが確認でき、均一なピンホールフリーの微結晶あるいはアモルファス性薄膜が得られることができ、発光均一性を向上させている。更に、共役系を切る二価基で結合していることにより、EL発光が長波長化することなく、また、合成あるいは精製が容易にできる長所を備えている。

【0019】また、一般式(II)中のA¹は置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基又は二価の芳香族複素環式基、A²は置換もしくは無置換の炭素数6

チル基等)又は一価の芳香族複素環式基を示す。R⁵及びR⁶は、それぞれ水素原子、置換もしくは無置換の炭素数6～20のアリール基、シクロヘキシル基、一価の芳香族複素環式基、炭素数1～10のアルキル基(メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、tert-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、イソヘキシル基等)、炭素数7～20のアラルキル基(ベンジル基、フェネチル基等)又は炭素数1～10のアルコキシ基(メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等)を示す。なお、R⁵、R⁶は同一でも異なってもよい。ここで、置換基とは、アルキル基、アリールオキシ基、アミノ基又はこれらの基を有するもしくは有しないフェニル基であり、該置換基は単一でも複数でもよい。R⁵の各置換基はA¹と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよく、同様にR⁶の各置換基はA²と結合して、飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。また、Qは、上記と同様に共役を切る二価基を表す。さらに、該

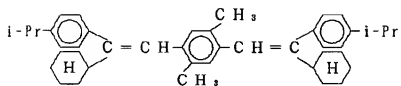
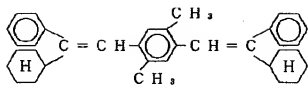
らに、本発明において、上記の一般式 (I)、一般式 (II) 又は一般式 (III) で表される有機化合物は、CIE 色度座標における青紫、紫青、青、緑青もしくは青緑の発光を呈する化合物であることが必要である。具体的

には、
【0020】
【化9】

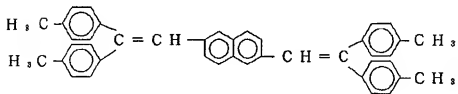
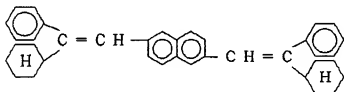
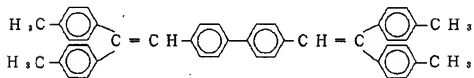
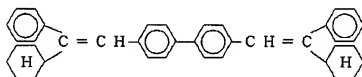
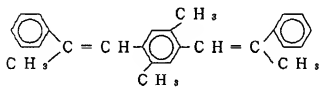


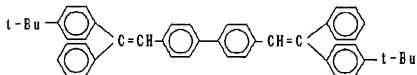
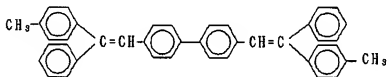
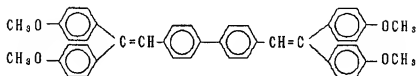
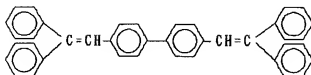
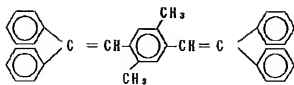
【0021】

【化10】

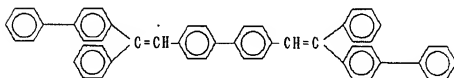


i-Pr : イソプロピル基, 以下同様



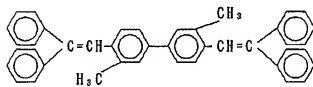
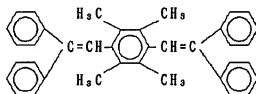
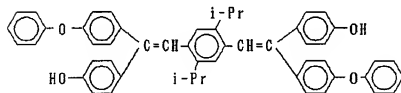
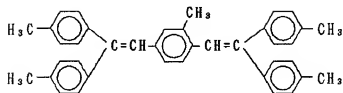
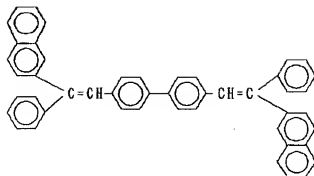


t-Bu: t-ブチル基, 以下同様



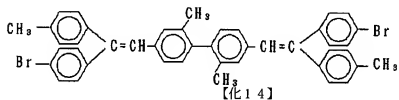
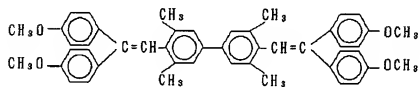
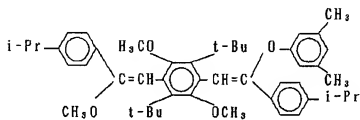
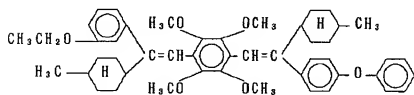
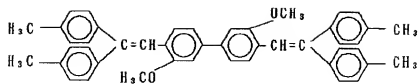
【0023】

【化12】



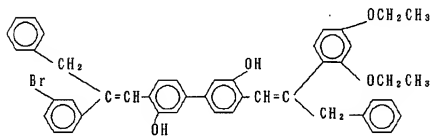
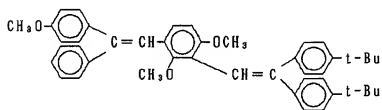
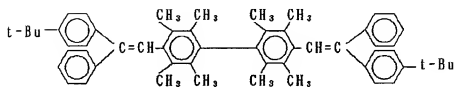
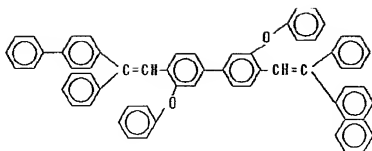
[0024]

[化13]



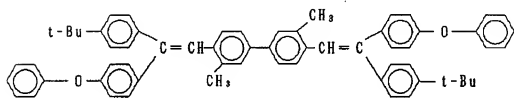
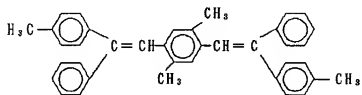
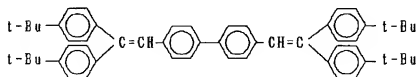
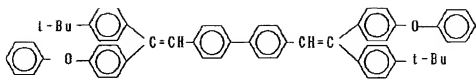
【0025】

【化14】



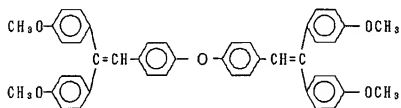
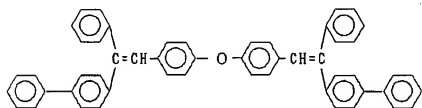
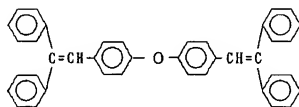
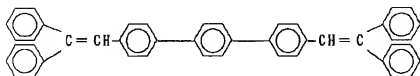
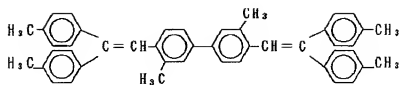
【0026】

【化15】



【0027】

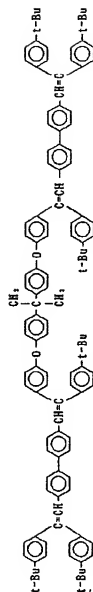
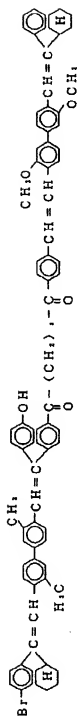
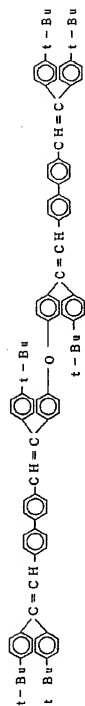
【化16】

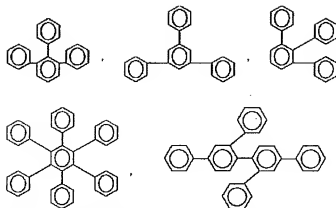


【0028】

【化17】

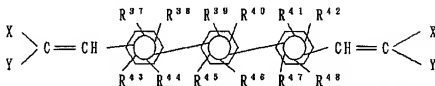
【0029】
【化18】





【0032】なども挙げられる。また、特願平5-170354号明細書に記載されている上記第一発光層の蛍光条件を満たす化合物としては、一般式 (XI)

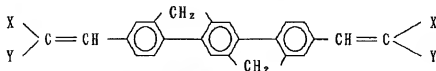
【0033】
【化20】



【0034】〔式中、R³⁷~R⁴⁸は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数1~6のアルキル基を示す。但し、R³⁷~R⁴⁸のうち少なくとも1つは炭素数1~6のアルキル基である。また、R³⁸とR³⁹、R⁴⁰とR⁴¹、R⁴⁴とR⁴⁵、R⁴⁶とR⁴⁷は、互いに結合して飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を形成してもよい。X及びYはそれぞれ独立に置換又は無置換の炭素数6~20のアリール基を示す。XとYは置換基と結合して置換もしくは無置換の飽和又は不飽和の五員環あるいは六員環を形成してもよい。ここで、置換基としては炭素数1~6のアルキル基、炭素数1~6のアルコキシ基、炭素数6~18のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、水酸基あるいはハロゲン原子を示す。これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。〕で表されるターフェレニ誘導体のスチルル化合物を挙げることができる。

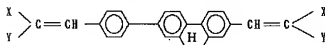
【0035】ここで、一般式 (XI) において、R³⁷~R⁴⁸は、それぞれ独立に水素原子あるいはメチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、n-ヘキシル基、イソヘキシル基などの炭素数1~6のアルキル基を示す。但し、R³⁷~R⁴⁸のうち少なくとも1つは炭素数1~6のアルキル基であり、特にメチル基又はエチル基が好ましい。また、R³⁸とR³⁹、R⁴⁰とR⁴¹、R⁴⁴とR⁴⁵、R⁴⁶とR⁴⁷は、互いに結合して飽和もしくは不飽和の五員環又は飽和もしくは不飽和の六員環を形成してもよい。飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を有するスチルル化合物の例としては、R³⁸とR³⁹、及びR⁴⁶とR⁴⁷が飽和五員環を形成する場合は、

【0036】
【化21】



【0037】などが挙げられ、R⁴⁶とR⁴⁷で飽和六員環を形成する場合には、

【0038】
【化22】



【0039】などが挙げられる。X及びYは、それぞれ独立に置換または無置換のフェニル基、ナフチル基、ピフェニル基、ターフェニル基、アントラリル基、フェナントリル基、ビレニル基、ペリレニル基など炭素数6~20のアリール基を示す。ここで、置換基としては、例

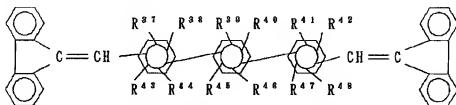
ル基、n-ブチル基、イソブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、イソペンチル基、t-ペンチル基、ネオペンチル基、n-ヘキシル基、イソヘキシル基などの炭素数1~6のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、イソプロポキシ基、n-ブチル

基、イソペンチルオキシ基、t-ペンチルオキシ基、n-ヘキシルオキシ基などの炭素数1～6のアルコキシ基、フェノキシ基、ナフチルオキシ基など炭素数6～18のアリールオキシ基、フェニル基、アミノ基、シアノ基、ニトロ基、酸基あるいはハロゲン原子が挙げられる。これらの置換基は単一でも複数置換されていてもよい。また、XとYは置換基と結合して置換もしくは無置

換の飽和又は不飽和の五員環あるいは飽和又は不飽和の六員環を形成してもよい。飽和もしくは不飽和の五員環又は六員環を有するステリル化合物の例としては、XとYが飽和五員環を形成する場合は、

【0040】

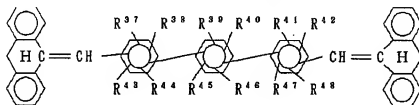
【化23】



【0041】などが挙げられ、XとYが飽和六員環形成する場合は、

【0042】

【化24】



【0043】などが挙げられる。

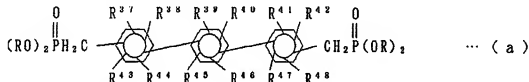
【0044】上記一般式 (XI) で表されるステリル化合物は、種々の公知の方法によって製造することができる。具体的には、次の2つの方法が挙げられる。

方法1

一般式 (a)

【0045】

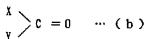
【化25】



【0046】〔式中、Rは炭素数1～4のアルキル基又はフェニル基を示し、R37～R48は前記と同じである。〕で表されるホスホン酸エステルと、一般式 (b)

【0047】

【化26】



【0048】〔式中、X、Yは前記と同じである。〕で表されるカルボニル化合物を塩基存在下で縮合する方法 (Wittig反応又はWittig-Horner反応) により合成することができる。

方法2

一般式 (c)

【0049】

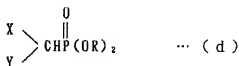
【化27】



【0050】〔式中、R37～R48は前記と同じである。〕で表されるジアルデヒド化合物と一般式 (d)

【0051】

【化28】



【0052】〔式中、R、X、Yは前記と同じである。〕で表されるホスホン酸エステルを塩基存在下で縮

erner 反応) により合成することができる。

【0053】この合成で用いる反応溶媒としては、炭化水素、アルコール類、エーテル類が好ましい。具体的には、メタノール；エタノール；イソプロパノール；ブタノール；2-メトキシエタノール；1, 2-ジメトキシエタン；ビス(2-メトキシエチル)エーテル；ジオキサン；テトラヒドロフラン；トルエン；キシレン；ジメチルスルホキシド；N, N-ジメチルホルムアミド；N-メチルピロリドン；1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノンなどが挙げられる。特に、テトラヒドロフラン、ジメチルスルホキシドが好適である。また、縮合剤としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ナトリ

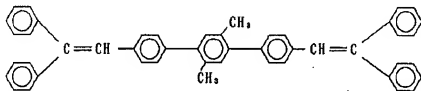
ウムアミド、水素化ナトリウム、n-ブチルリチウム、ナトリウムメチラート、カリウム-t-ブトキシドなどが好ましく、特にn-ブチルリチウム、カリウム-t-ブトキシドが好ましい。反応温度は、用いる反応原料の種類などにより異なり、一義的に定めることはできないが、通常は0℃～約100℃までの広範囲を指定できる。特に好ましくは0℃～室温の範囲である。

【0054】以下に、本発明で用いられる上記スチリル化合物の具体例(1)～(26)を挙げるが、本発明はそれらに限定されるものではない。

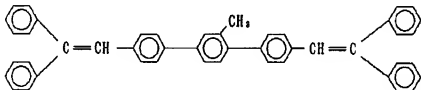
【0055】

【化29】

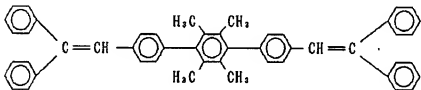
(1)



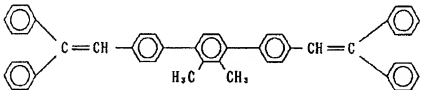
(2)



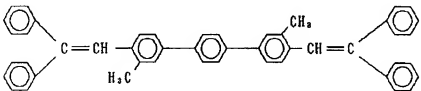
(3)



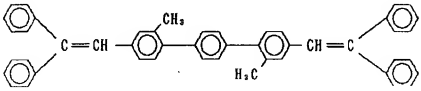
(4)



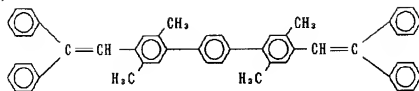
(5)



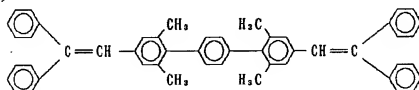
(6)



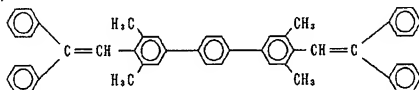
(7)



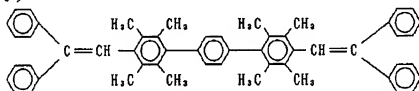
(8)



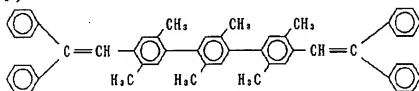
(9)



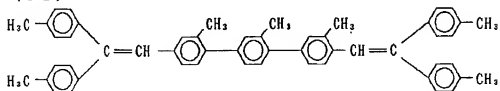
(10)



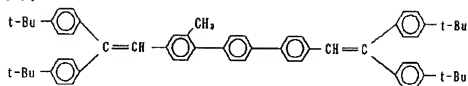
(11)



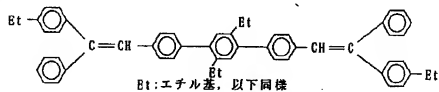
(12)



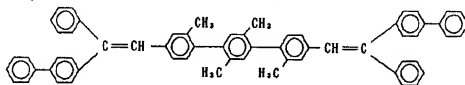
(13)



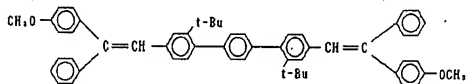
(14)



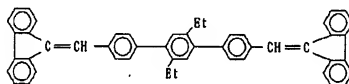
(15)



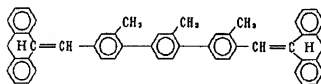
(16)



(17)



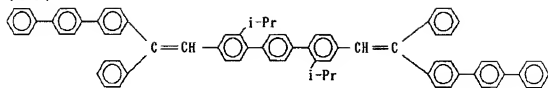
(18)



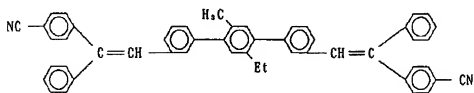
【0058】

【化32】

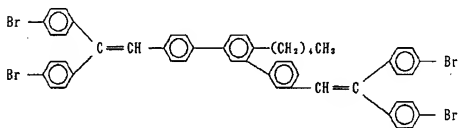
(1 9)



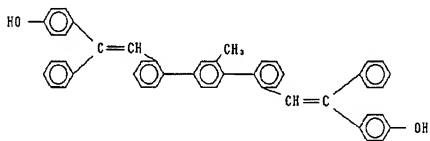
(2 0)



(2 1)



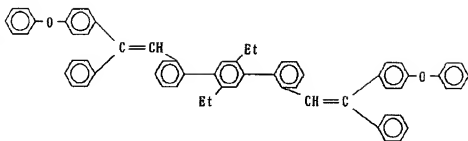
(2 2)



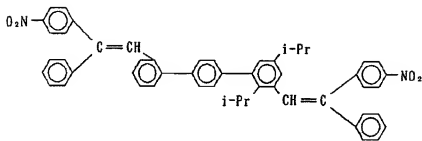
[0 0 5 9]

[化 3 3]

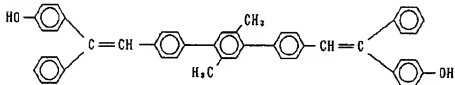
(2 3)



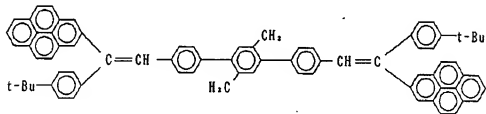
(2 4)



(2 5)



(2 6)

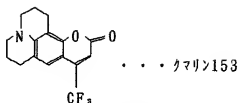
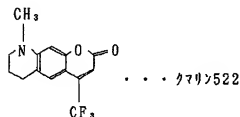
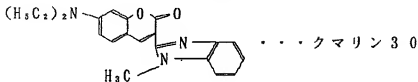
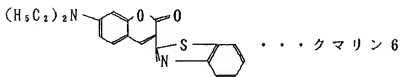
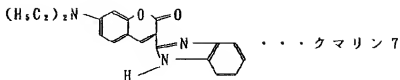


【 0 0 6 0 】 一方、第二発光層に用いられる、固体状態の蛍光ピーク波長が 4 8 0 n m 以上 5 8 0 n m 未満である有機化合物については、特に制限はなく、例えばヨーロッパ公開特許第 0 2 8 1 3 8 1 号公報に記載されてい

るレーザー色素として用いられるクマリン誘導体が挙げられる。具体的には、

【 0 0 6 1 】

【 化 3 4 】



【0062】などである。さらに、特開平3-231970号公報あるいは特願平2-279304号明細書に記載されている有機化合物中で上記第二発光層の蛍光条件を満足するものが挙げられる。さらに、好ましいものとして、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体を挙げることができる。具体的には、オキシニン（一般に8-キノリノールまたは8-ヒドロキシキノリン）

のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物である。このような化合物は高水準の性能を示し、容易に薄膜形態に成形される。オキシノイド化合物の例は下記構造式を満たすものである。

【0063】

【化35】



【0064】〔式中、Mtは金属を表し、nは1～3の整数であり、且つ、Zはその各々の位置が独立であって、少なくとも2以上の縮合芳香族環を完成させるために必要な原子を示す。〕ここで、Mtで表される金属は、一価、二価又は三価の金属とすることができるものであり、例えばリチウム、ナトリウムまたはカリウム等のアルカリ金属、マグネシウム又はカルシウム等のアルカリ土類金属、ホウ素又はアルミニウム等の土類金属である。一般に有用なキレート化合物であると知られている一価、二価または三価の金属はいずれも使用することができる。

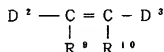
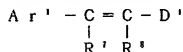
【0065】また、Zは、少なくとも2以上の縮合芳香族環の一方がアゾールまたはアジンからなる複素環を形成させる原子を示す。ここで、もし必要であれば、上記縮合芳香族環に他の異なる環を付加することが可能であ

することを回避するため、Zで示される原子の数は18以下に維持することが好ましい。

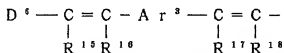
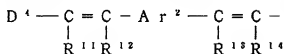
【0066】さらに、具体的にキレート化オキシノイド化合物を例示すると、トリス（8-キノリノール）アルミニウム、ビス（8-キノリノール）マグネシウム、ビス（8-キノリノール）亜鉛、ビス（2-メチル-8-キノリノール）亜鉛、ビス（ベンゾ-8-キノリノール）亜鉛、ビス（2-メチル-8-キノリノール）アルミニウムオキソド、トリス（8-キノリノール）インジウム、トリス（5-メチル-8-キノリノール）アルミニウム、8-キノリノールリチウム、トリス（5-クロロ-8-キノリノール）ガリウム、トリス（2-メチル-8-キノリノール）ガリウム、ビス（5-クロロ-8-キノリノール）カルシウム、5, 7-ジクロロ-8-キノリノールアルミニウム、トリス（5, 7-ジプロモ

(7-アプロピル-8-キノリノール) アルミニウム、ビス(8-キノリノール) ベリリウム、ビス(2-メチル-8-キノリノール) ベリリウムなどがある。

【0067】本発明の白色有機EL素子においては、前記第一発光層及び/又は第二発光層に、特願平5-129438号明細書に記載されているスチルベン誘導体、ジスチルアリレン誘導体及びトリススチルアリレン誘導体の中から選ばれた少なくとも一種を含有させるのが好ましい。該スチルベン誘導体とは、少なくとも2つの芳香族環を有し、これら芳香族環をビニル基又は置換されたビニル基により結合して構成され、かつ上記芳香族環又はビニル基のいずれかに電子供与性基を有する化合物である。ジスチルアリレン誘導体とは、1つのアリレン基に2つの芳香族環がビニル基又は置換ビニル基を介して結合し、かつ電子供与性基を有する化



【0069】〔式中、Ar¹は炭素数6〜20のアリール基を示す。R⁷〜R¹⁰は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数6〜20のアリール基を示す。D¹〜D³は、それぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数6〜20のアリール基又は炭素数10〜30の縮合多環族基を示す。ここで、Ar¹、R⁷〜R¹⁰は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数1〜10のアルキル基、炭素



【0071】〔式中、Ar²およびAr³は、それぞれ独立に炭素数6〜20のアリレン基を示し、Ar⁴は炭素数6〜20のアリール基を示す。R¹¹〜R¹⁸は、それぞれ独立に水素原子又は炭素数6〜20のアリール基を示す。ここで、Ar²〜Ar⁴、R¹¹〜R¹⁸は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数1〜10のアルキル基、炭素数1〜10のアルコキシ基、炭素数6〜10のアリールオキシ基、炭素数6〜10のアラルキル基又

化合物である。トリススチルアリレン誘導体とは、1つの3価の芳香族環基に3つの芳香族環がビニル基または置換ビニル基を介して結合し、かつ電子供与性基を有する化合物である。電子供与性基を分子骨格に有する前記誘導体において該電子供与性基とは、好ましくは炭素数1〜10のアルコキシ基、炭素数6〜10のアリールオキシ基および炭素数1〜30の炭化水素基を有するアミノ基を示す。上記誘導体において、特に好ましいものは下記一般式(IV)〜(X)で表される化合物であり、(IV)及び(V)はスチルベン誘導体、(VI)及び(VI')はジスチルアリレン誘導体、(VIII)〜(X)はトリススチルアリレン誘導体を表す。

【0068】

〔化36〕



数1〜10のアルコキシ基、炭素数6〜10のアリールオキシ基、炭素数6〜10のアラルキル基又は炭素数1〜20の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていてもよい。また、この置換基が互いに結合し飽和もしくは不飽和の五員環ないし六員環を形成してもよい。〕

【0070】

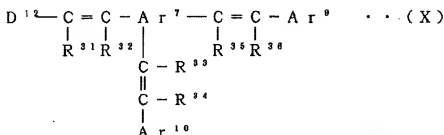
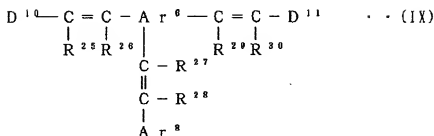
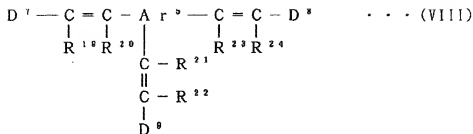
〔化37〕



は炭素数1〜20の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていてもよい。また、これらの置換基が互いに結合して飽和もしくは不飽和の五員環ないし六員環を形成してもよい。D⁴〜D⁶は、それぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数6〜20のアリール基又は炭素数10〜30の縮合多環族基を示す。〕

【0072】

〔化38〕

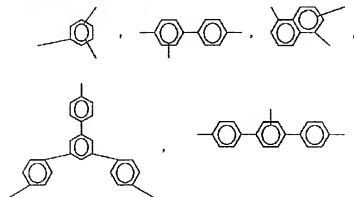


【0073】〔式中、 $Ar^5 \sim Ar^7$ は、それぞれ独立に炭素数6～24の3価の芳香族環基を示し、 $Ar^8 \sim Ar^{10}$ は、それぞれ独立に炭素数6～20のアリール基を示す。 $R^{19} \sim R^{36}$ は、それぞれ独立に水素原子または炭素数6～20のアリール基を示す。 $D^7 \sim D^{12}$ は、それぞれ独立に電子供与性基で置換された炭素数6～20のアリール基又は炭素数10～30の縮合多環族基を示す。ここで、 $Ar^5 \sim Ar^7$ 、 $R^{19} \sim R^{36}$ は、それぞれ独立に無置換でもよいし、炭素数1～10のアルキル基、炭素数1～10のアルコキシ基、炭素数6～10のアラルキル基、炭素数6～10のアリールアルキル基又は炭素数1～20の炭化水素基を有するアミノ基で置換されていてもよい。また、これらの置換基が互いに結合し飽和もしくは不飽和の五員環ないし六員環を形成して

もよい。〕上記一般式(IV)～(X)におけるアリール基としては、好ましくはフェニル基、ビフェニル基、ナフチル基、ピレニル基、ターフェニル基、アントラニル基、トリル基、キシリル基、スチルベニル基、チエニル基、ピチエニル基、チオフェン基、ピチオフェン基、ターチオフェン基などが挙げられる。アリレン基としては、好ましくはフェニレン基、ビフェニレン基、ナフチレン基、アントラニレン基、ターフェニレン基、ピレニレン基、スチルベニレン基、チエニレン基、ピチエニレン基などが挙げられる。3価の芳香族環基とは、好ましくは

【0074】

【化39】



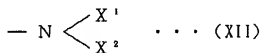
【0075】が挙げられる。また、上記置換基であるアリールオキシ基としては、フェニルオキシ基、ビフェニ

基、ターフェニルオキシ基、ピレニルオキシ基などが挙げられ、アルキル基としては、メチル基、エチル基、イ

シル基などが挙げられる。アルコキシ基としては、メトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基、ターシャルブトキシ基、ベンチルオキシ基などが挙げられ、炭化水素基を有するアミノ基としては、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、フェニルエチルアミノ基、フェニルメチルアミノ基、ジトリルアミノ基、エチルフェニルアミノ基、フェニルナフチルアミノ基、フェニルビフェニルアミノ基などが挙げられる。前記一般式 (IV) ~ (X) における $D^1 \sim D^{12}$ は、電子供与性基で置換された炭素数 1 ~ 20 のアリール基、又は炭素数 10 ~ 30 の縮合多環基である。ここで、電子供与性基とは、好ましくは炭素数 1 ~ 10 のアルコキシ基、炭素数 6 ~ 20 のアリールオキシ基、炭素数 1 ~ 30 の炭化水素基を有するアミノ基が挙げられ、特に好ましくは炭素数 1 ~ 30 の炭化水素基を有するアミノ基が挙げられる。このアミノ基としては、一般式 (XII)

【0076】

【化40】

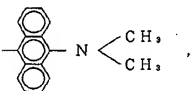
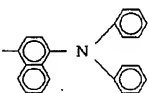
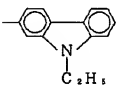
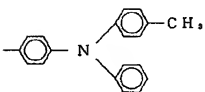
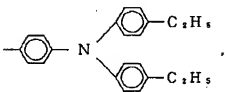
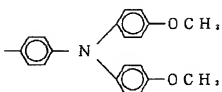
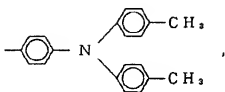
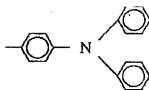
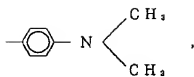


【0077】〔式中、 X^1 及び X^2 は、それぞれ独立に炭素数 6 ~ 20 のアリール基、炭素数 1 ~ 10 のアルキ

ル基又は炭素数 6 ~ 20 のアラルキル基を示し、互いに結合して飽和又は不飽和の環状構造を形成してもよい。また、 X^1 、 X^2 には、炭素数 1 ~ 10 のアルキル基、炭素数 7 ~ 10 のアラルキル基、炭素数 6 ~ 10 のアリールオキシ基又は炭素数 6 ~ 10 のアルコキシ基が置換してもよい。さらに、一般式 (XII) で表されるアミノ基に置換するアリール基としての X^1 と X^2 が互いに結合した含窒素芳香族環基となってもよい。〕で表されるものが挙げられる。上記電子供与性基としては、例えばフェニルオキシ基、ビフェニルオキシ基、ナフチルオキシ基、アントラニルオキシ基、ターフェニルイルオキシ基などのアリールオキシ基、メトキシ基、エトキシ基、イソプロポキシ基、ターシャルブチルオキシ基、ベンチルオキシ基などのアルコキシ基、ジメチルアミノ基、ジエチルアミノ基、ジフェニルアミノ基、フェニルメチルアミノ基、フェニルエチルアミノ基、フェニルメチルエチルアミノ基、ジトリルアミノ基、エチルフェニルアミノ基、フェニルナフチルアミノ基、フェニルビフェニルアミノ基などの炭化水素基を有するアミノ基などが挙げられる。また、 $D^1 \sim D^{12}$ の具体例としては、

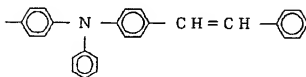
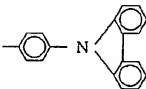
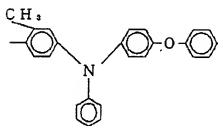
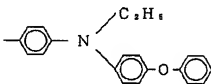
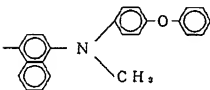
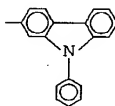
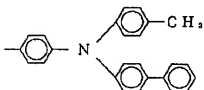
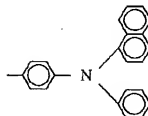
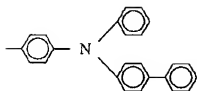
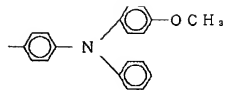
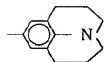
【0078】

【化41】



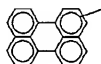
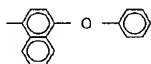
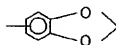
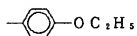
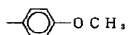
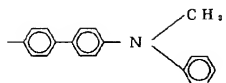
【0079】

【化42】



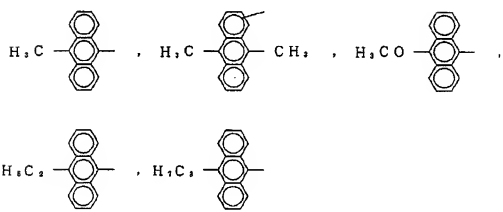
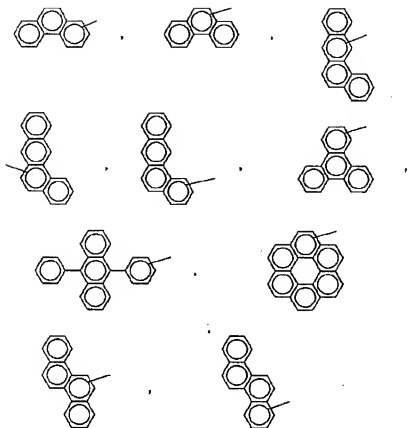
【0080】

【化43】



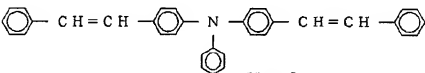
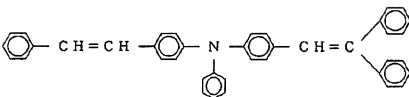
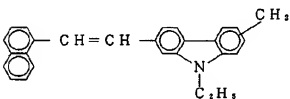
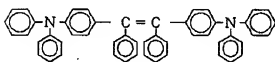
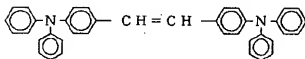
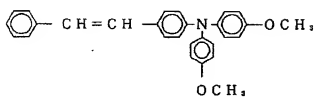
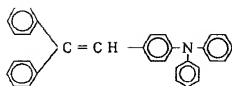
【0081】

【化44】



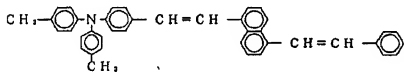
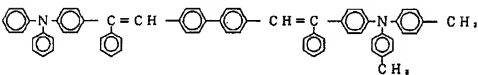
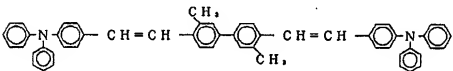
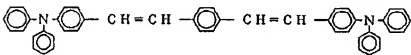
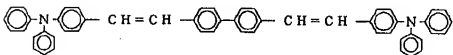
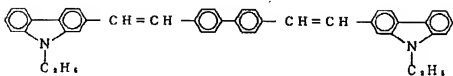
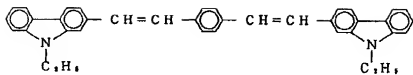
【0082】などが挙げられる。上記一般式(IV)～
(X)で表される化合物の具体例としては、

【0083】
【化45】



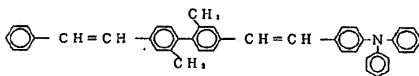
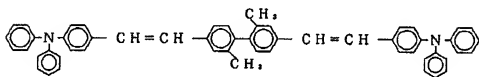
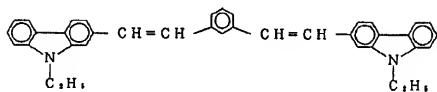
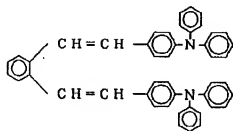
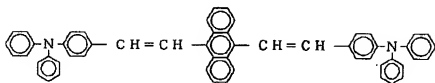
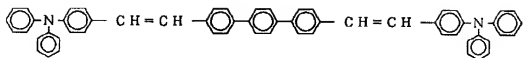
【0084】

【化46】



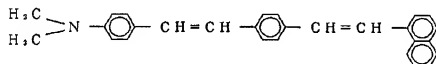
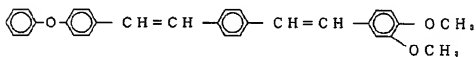
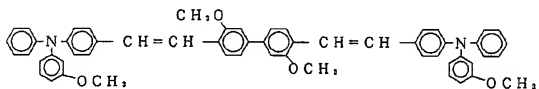
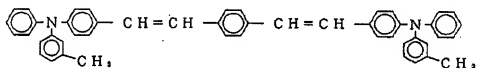
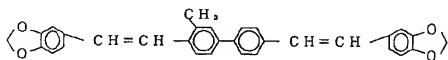
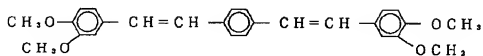
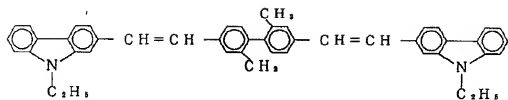
[0085]

[化47]



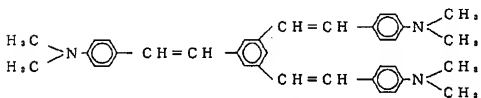
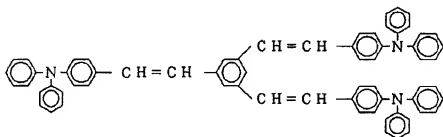
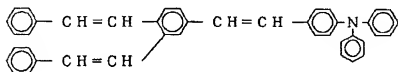
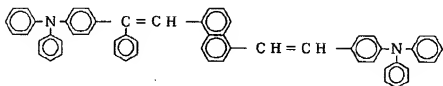
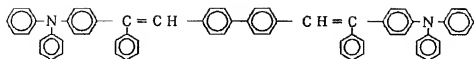
【0086】

【化48】



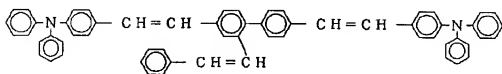
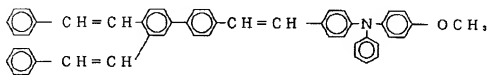
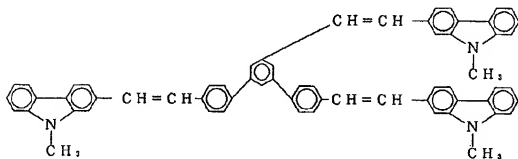
[0087]

[(49)]



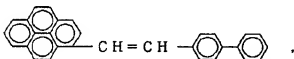
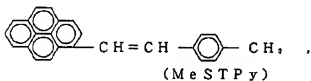
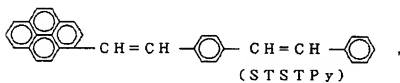
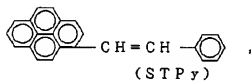
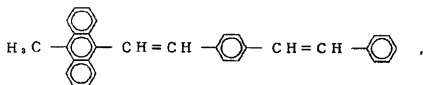
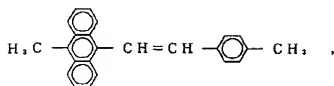
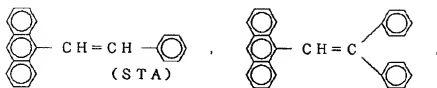
【0088】

【化50】



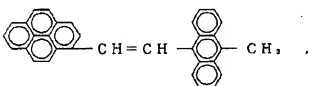
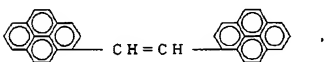
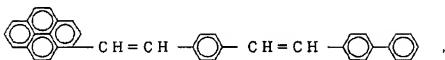
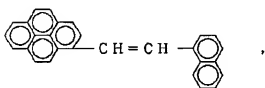
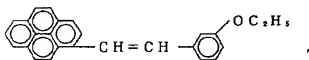
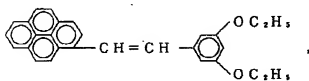
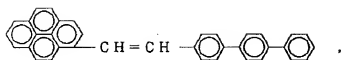
【0089】

【化51】



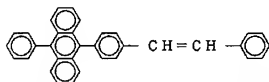
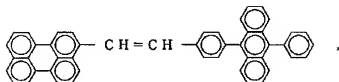
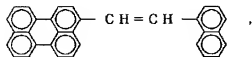
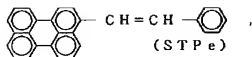
【0090】

【化52】



【0091】

【化53】



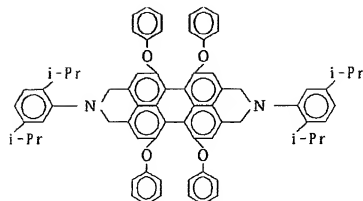
【0092】などを挙げることができる。

【0093】本発明の白色有機EL素子においては、溶液状態での蛍光ピーク波長が580nm以上650nm以下である有機化合物を、前記第一発光層、第二発光層及びその他の有機化合物層の中から選ばれた少なくとも一層に含有させることが必要である。この有機化合物としては、溶液状態でのピーク波長が580nm以上650nm以下であればよく、特に制限はないが、例えばヨ

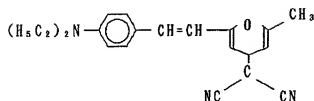
ロッパ公開特許第0281381号公報に記載されている赤色発進レーザー色素として用いられるジシアノメチレンピラン誘導体、ジシアノメチレンチオピラン誘導体、フルオレセイン誘導体、ベリレン誘導体などが挙げられる。具体的には

【0094】

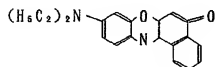
【化54】



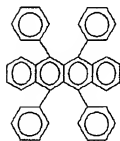
(ルモゲン F レッド)



(ジシアノメチレンピラン)



(フェノキサゾン)



(ルブレン)

【0095】などが挙げられる。これらの有機化合物は、層を形成する有機化合物に対して、0.1～10モル%、好ましくは0.5～5モル%の割合で含有させることが必要である。この0.1～10%というのは、濃度消光を生じないための濃度範囲である。

【0096】本発明の白色有機EL素子の構成は、発光層の構成以外は限定されるものではなく任意の素子構成を採ることができる。具体的に、隔極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極からなる有機EL素子の各構成について説明する。

【0097】本発明の白色有機EL素子は、支持基板上にて形成することが好ましい。用いられる支持基板は、透明性を有するものが好ましく、一般にガラス、透明プ

子における陽極としては、仕事関数の大きい(4 eV以上)金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが好ましく用いられる。このような電極物質の具体例としては、Auなどの金属、CuI、ITO、SnO₂、ZnOなどの誘電性を有した透明材料又は半透明材料が挙げられる。該陽極は、これらの極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより作製することができる。この電極より発光を取り出す場合には、透過率を10%より大きくすることが望ましく、また、電極としてのシート抵抗は数百Ω/□以下が好ましい。さらに膜厚は材料にもよるが、通常10 nm～1 μm、好ましくは10～200 nmの範囲で選ばれる。

(4 eV以下) 金属、合金、電気伝導性化合物及びこれらの混合物を電極物質とするものが用いられる。このような電極物質の具体例としては、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、マグネシウム、リチウム、マグネシウム/銅混合物、 $Al / (Al_2O_3)$ 、インジウム、希土類金属などが挙げられる。該陰極は、これらの電極物質を蒸着やスパッタリングなどの方法により、薄膜を形成させることにより、作製することができる。また、電極としてのシート抵抗は数百 Ω / \square 以下が好ましく、膜厚は通常10 nm~1 μm 、好ましくは50~200 nmの範囲で選ばれる。なお、このE L素子においては、該陰極又は陰極のいずれか一方が透明又は半透明であることが、発光を透過するため、発光の取出し効率がよく好都合である。

【0099】このE L素子における発光層は、上記第一発光層と第二発光層からなり、かつ第一発光層、第二発光層の順に透明電極又は陽極側から順次積層された積層構造を有している。特に、陰極側に近い発光層が強い発光層より電子輸送能力が大であることが好ましい。これは、二つの発光層界面で主たる発光が生じ、ここの発光もしくは励起状態のエネルギーを利用して、液体状態での蛍光ピークが580 nm以上650 nm以下である有機化合物が発光し、透明電極から白色発光を取り出させる。第一発光層と第二発光層の積層順が逆になった場合、第一発光層の発光が第二発光層に吸収され、良好な白色が得られなくなる。液体状態での蛍光ピークが580 nm以上650 nm以下である有機化合物は、発光波長では長波長成分であるので、他の成分により吸収されることはなく、有機化合物層のいかなる層に含有させてもよい。そして、発光層の厚さは、好ましくは第二発光層が第一発光層の膜厚以上であればよく、この範囲で適宜状況に応じて選ぶことができる。上記発光層の形成方法は、限定されることはなく、例えば蒸着法、スピニング法、キャスト法、LB法などの公知の方法により薄膜化することにより形成することができるが、特に分子堆積膜であることが好ましい。ここで、分子堆積膜とは、該化合物の気相状態から沈着され形成された薄膜や、該化合物の溶液状態又は液相状態から固体化され形成された膜のことであり、通常この分子堆積膜はLB法により形成された薄膜(分子累積膜)とは、凝集構造、高次構造の相違や、それに起因する機能的な相違により区別することができる。

【0100】このように本発明における発光層は、電界印加時に、陽極又は正孔注入輸送層より正孔を注入することができ、かつ陰極又は電子注入輸送層より電子を注入することができる注入機能、注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる輸送機能、電子と正孔の再結合の場を提供し、これを発光につなげる発光機能などを有している。本発明の発光層とは、可視光を発光する

の注入されやすさには違いがあっても構わない。また、正孔と電子の移動度で表される輸送機能に大小があってもよいが、どちらか一方を移動することが好ましい。さらに、本発明で用いられる発光材料は、他の有機化合物層内において再結合した電荷による励起状態の供給をうけて発光してもよい。次に、本発明のE L素子における正孔注入輸送層は、必ずしも該素子に必要なものでないが、発光性能の向上のため用いた方が好ましいものである。この正孔注入輸送層としては、より低い電界で正孔を発光層に輸送する材料が好ましく、さらに正孔の移動度が $10^4 \sim 10^6$ ボルト \cdot cmの電場で少くとも 10^{-6} cm 2 / ボルト \cdot 秒であれば尚好ましい。例えば、従来、光導伝材料において、正孔の電荷注入輸送材料として慣用されているものやE L素子の正孔注入輸送層に使用される公知のものの中から任意のものを選択して用いることができる。

【0101】正孔注入輸送層としては、例えばトリアゾール誘導体(米国特許第3,112,197号明細書等参照)、オキサジアゾール誘導体(米国特許第3,189,447号明細書等参照)、イミダゾール誘導体(特公昭37-16096号公報等参照)、ポリアリールカルボン誘導体(米国特許第3,615,402号明細書、同3,820,989号明細書、同3,542,544号明細書、特公昭45-5555号公報、同51-10983号公報、特開昭51-93224号公報、同55-17105号公報、同56-4148号公報、同55-108667号公報、同55-156953号公報、同56-36656号公報等参照)、ピラゾリン誘導体及びピラゾロン誘導体(米国特許第3,180,729号明細書、同4,278,746号明細書、特開昭55-88064号公報、同55-88065号公報、同49-105537号公報、同55-51086号公報、同56-80051号公報、同56-88141号公報、同57-45545号公報、同54-112637号公報、同55-74546号公報等参照)、フェニレンジアミン誘導体(米国特許第3,615,404号明細書、特公昭51-10105号公報、同46-3712号公報、同47-25336号公報、特開昭54-53435号公報、同54-110536号公報、同54-119925号公報等参照)、アリールアミン誘導体(米国特許第3,567,450号明細書、同3,180,703号明細書、同3,240,597号明細書、同3,658,520号明細書、同4,232,103号明細書、同4,175,961号明細書、同4,012,376号明細書、特公昭49-35702号公報、同39-27577号公報、特開昭55-144250号公報、同56-119132号公報、同56-22437号公報、西独特許第1,110,518号明細書等参照)、アミノ置換カルボン誘導体(米国特許第3,526,501号明細書等参照)、オキサゾール誘導体(米国特許第3,257,203号明細書などに記載のもの)、スチリルアントラセン誘導体(特開昭56-

昭54-110837号公報等参照)、ヒドラゾン誘導体(米国特許第3,717,462号明細書、特開昭54-59143号公報、同55-52063号公報、同55-52064号公報、同55-46760号公報、同55-85495号公報、同57-11350号公報、同57-148749号公報、特開平2-311591号公報等参照)、スチルベン誘導体(特開昭61-210363号公報、同61-228451号公報、同61-14642号公報、同61-72255号公報、同62-47646号公報、同62-36674号公報、同62-10652号公報、同62-30255号公報、同60-93445号公報、同60-94462号公報、同60-174749号公報、同60-175052号公報等参照)などを挙げることができる。さらに、シラザン誘導体(米国特許第4,950,950号明細書)、ポリシラセン(特開平2-204996号公報)、アニリン系共重合体(特開平2-28263号公報)、また特願平1-211399号明細書で示された導電性高分子オリゴマー、特にチオフェンオリゴマーなどが挙げられる。

【0102】本発明においては、これらの化合物を正孔注入輸送層の材料として使用することができるが、次に示すボルフィリン化合物(特開昭63-2956965号公報などに記載のもの)及び芳香族第三級アミン化合物及びスチルルアミン化合物(米国特許第4,127,412号明細書、特開昭53-27033号公報、同54-58445号公報、同54-149634号公報、同54-64299号公報、同55-79450号公報、同55-144250号公報、同56-119132号公報、同61-295558号公報、同61-98353号公報、同63-295695号公報等参照)、特に該芳香族第三級アミン化合物を用いることが好ましい。

【0103】該ボルフィリン化合物の代表例としては、ボルフィン:1, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ボルフィン銅(II):1, 10, 15, 20-テトラフェニル-21H, 23H-ボルフィン亜鉛(II):5, 10, 15, 20-テトラキス(ベンタフルオロフェニル)-21H, 23H-ボルフィン; シリコンフタロシアニオンオキシド; アルミニウムフタロシアニオンクロリド; フタロシアニン(無金属); ジリチウムフタロシアニン; 銅テトラメチルフタロシアニン; 銅フタロシアニン; クロムフタロシアニン; 亜鉛フタロシアニン; 鉛フタロシアニン; チタニウムフタロシアニンオキシド; マグネシウムフタロシアニン; 銅オクタメチルフタロシアニンなどが挙げられる。また、該芳香族第三級アミン化合物及びスチルルアミン化合物の代表例としては、N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジアミノフェニル; N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(3-メチルフェニル)-4, 4'-ジアミノ

トリルアミノフェニル)プロパン; 1, 1'-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)シクロヘキサン; N, N, N', N'-テトラ-*p*-トリル-4, 4'-ジ-アミノビフェニル; 1, 1'-ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)-4-フェニルシクロヘキサン; ビス(4-ジ-メチルアミノ-2-メチルフェニル)フェニルメタン; ビス(4-ジ-*p*-トリルアミノフェニル)フェニルメタン; N, N'-ジフェニル-N, N'-ジ(4-メトキシフェニル)-4, 4'-ジ-アミノビフェニル; N, N, N', N'-テトラフェニル-4, 4'-ジ-アミノジフェニルエーテル; 4, 4'-ビス(ジフェニルアミノ)クオドリフェニル; N, N, N-トリ(*p*-トリル)アミン; 4-(ジ-*p*-トリルアミノ)-4'-[4(ジ-*p*-トリルアミノ)スチルル]スチルベン; 4-N, N-ジフェニルアミノ(2-ジフェニルビニル)ベンゼン; 3-メトキシ-4'-N, N-ジフェニルアミノスチルベンゼン; N-フェニルカルバゾール; 芳香族ジメチリデン系化合物などが挙げられる。また、発光層の材料として示した芳香族メチリジン化合物(特開平2-279304号明細書および特開平3-231970号公報参照)も、正孔注入輸送層の材料として用いることができる。さらに、*p*-型-Si, *p*-型-SiCなどの無機化合物(国際公開特許WO90-05998号公報参照)も、正孔注入輸送層の材料として用いることができる。

【0104】本発明のE.L.素子における正孔注入輸送層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピコート法、キャスト法、LB法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。この正孔注入輸送層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は1nm~10μm、好ましくは5nm~5μmである。この正孔注入輸送層は、これらの正孔注入輸送材料一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよいし、あるいは、前記正孔注入輸送層とは別種の化合物からなる正孔注入輸送層を積層したものであってもよい。

【0105】本発明の白色有機E.L.素子においては、発光層と陰極間の付着性を向上させるために、該電子注入輸送層は、発光層及び陰極に対し付着性の高い材料を含有するのが好ましい。このような付着性の高い材料としては、ニトロ置換フルオレノン誘導体、アントラキノジメタン誘導体、ジフェニルキノリン誘導体、チオピランジオキシド誘導体、ナフタレンピレン誘導体などの複素環テトラカルボン酸無水物、カルボジイミド、フルオレニリデンメタン誘導体、アントラキノジメタン誘導体およびアントロン誘導体、オキサジアゾール誘導体、その他特定の電子伝達性化合物などを挙げることができる。また、8-ヒドロキシキノリン又はその誘導体の金属錯体(AI, Zn, Li, Ga, Be, In, Mg, Cu, Ca, SnまたはPb)を挙げることができる。具体的

ドロキシキノリン)のキレートを含む金属キレートオキシノイド化合物である。このような化合物は高水準の性能を示し、容易に薄膜形態に成形される。

【0106】さらに、具体的にキレート化オキシノイド化合物を例示すると、トリス(8-キノリノール)アルミニウム;ピス(8-キノリノール)マグネシウム;ピス(ペンゾー8-キノリノール)亜鉛;ピス(2-メチル-8-キノリノール)アルミニウムオキシド;トリス(8-キノリノール)インジウム;トリス(5-メチル-8-キノリノール)アルミニウム;8-キノリノールリチウム;トリス(5-クロロ-8-キノリノール)ガリウム;ピス(5-クロロ-8-キノリノール)カルシウム;5,7-ジクロロ-8-キノリノールアルミニウム;トリス(5,7-ジプロモ-8-ヒドロキシキノリノール)アルミニウム等がある。その他に、メタルフリーあるいはメタルフタロシアニン、それらの末端がアルキル基またはスルホン基で置換されているものも好ましい。さらに、発光層の材料として前述したジスチルピラジン誘導体も電子注入輸送層の材料として用いることができる。さらに、p型-Si、p型-SiCなどの無機化合物(国際公開特許W9000-05998号公報参照)も、電子注入輸送層の材料として用いることができる。

【0107】本発明のEL素子における電子注入輸送層は、上記化合物を、例えば真空蒸着法、スピンコート法、キャスト法、LB法等の公知の薄膜化法により製膜して形成することができる。この電子注入輸送層としての膜厚は、特に制限はないが、通常は1nm~10μm、好ましくは5nm~5μmである。この電子注入輸送層は、これらの電子注入輸送材料一種又は二種以上からなる一層で構成されてもよいし、あるいは、前記電子注入輸送層とは別種の化合物からなる電子注入輸送層を積層したものであってもよい。

【0108】

【実施例】次に、実施例により本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの例によってなんら限定されるものではない。

実施例1~3

2.5mm×7.5mm×1.1mmのガラス基板上にITOを蒸着法にて100nmの膜厚で製造したものを透明電

極基板とした。この基板をイソプロピルアルコール中にて10分間超音波洗浄を行い、浸漬した。この基板を乾燥窒素中にて乾燥し、次いで、UVオゾン洗浄を(株)サムコインターナショナル研究所製の装置(UV-300)にて行い、透明電極基板とした。この透明電極基板を市販の蒸着装置(日本真空技術(株)製)の基板ホルダーに設置し、モリブデン製抵抗加熱ポートにN、N'-ジフェニル-N、N'-ビス(3-メチルフェニル)-[1,1'-ジフェニル]-4,4'-ジアミン(TPD)を200mg入れ、更に、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに4,4'-ビス(2,2'-ジフェニルニル)ビフェニル(DPVBi)を200mg入れ、さらに、別のモリブデン製抵抗加熱ポートに第1表に示す化合物(A)を入れ、真空槽を1×10⁻⁴Paまで減圧した。その後、TPD入りポートを215~220℃まで加熱し、TPDを蒸着速度0.1~0.3nm/秒で透明支持基板上に蒸着して、膜厚60nmの正孔注入輸送層を製膜した。このときの基板温度は室温であった。

【0109】次に、これを取り出すことなく、この正孔注入輸送層の上に、DPVBiの入ったポートを加熱して第一発光層として40nm積層蒸着した。このとき、同時に化合物(A)のポートを加熱し、第一発光層に化合物(A)を第1表に示す(b)モル%の割合で含有させた。その後、真空槽を大気圧に戻し、新たにモリブデン製抵抗加熱ポートに8-ヒドロキシキノリン-アルミニウム錯体(A1q)を200mg入れ、さらに別のモリブデン製抵抗加熱ポートに第1表に示す化合物(C)を入れ、再度、真空槽を1×10⁻⁴Paまで減圧した。次いでA1q入りのポートを加熱し、第二発光層として、20nm製膜した。このとき、同時に化合物(C)のポートも加熱し、化合物(C)を第1表に示す(d)モル%の割合で、第二発光層に含有させた。その後、真空槽を大気圧へ再度戻し、モリブデン製抵抗加熱ポートにマグネシウムリボンを1g入れ、タングステンバスケットに銀ワイヤーを500mg入れて、真空槽を1×10⁻⁴Paまで減圧した。この後、マグネシウムを蒸着速度1.4nm/秒、銀を蒸着速度0.1nm/秒で膜厚150nm同時蒸着し、混合金属からなる陰極とした。

【0110】

【表1】

第 1 表

	(A) 化合物の種類	(b) (A)の含有量 (モル%)	(C) 化合物の種類	(d) (C)の含有量 (モル%)
実施例 1	PAVB i	3.0	ルブレン*	0.5
実施例 2	PAVTP	3.0	ルブレン	0.5
実施例 3	PAVB i	3.0	ルモルゲンF	3.0

*：アルドリッチ社製

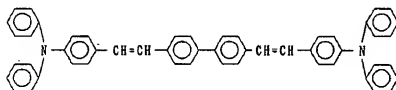
【0111】なお、各有機化合物の蛍光ピーク波長は、DPVB i (固体)：465 nm、PAVB i (固体)：463 nm、PAVTP (固体)：454 nm、Alq (固体)：500 nm、ルブレン (ジメチルホルムアミド0.1重量%溶液)：585 nm及びルモゲンF

(ジメチルホルムアミド0.1重量%溶液)：595 nmであった。また、PAVB i及びPAVTPの構造式を次に示す。

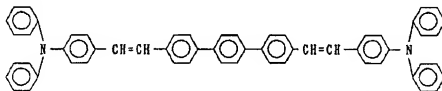
【0112】

【化55】

PAVB i



PAVTP



【0113】この素子の初期性能の代表値及び半減寿命を求めた。その結果を第2表に示す。なお、半減寿命は、初期輝度：100 cd/m²、直流通電流駆動及び駆動環境：乾燥窒素雰囲気下の条件で測定を行い、初期輝度の1/2に達した時間で表した。

【0114】実施例 4

実施例1～3と同じ形状のITO付きガラス基板に同じ洗浄工程を施し、透明電極基板とし、真空槽の基板ホルダーに設置した。モリブデン製抵抗加熱ポートにTPDを200 mg入れ、さらに、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにルブレンを入れ、真空槽を1×10⁻⁴ Paまで減圧した。その後、TPD入りポートを加熱し、TPDを蒸着速度29～30 nm/秒で透明支持基板上に蒸着して、膜厚60 nmの正孔注入輸送層を製膜した。これ

の割合で正孔注入輸送層にルブレンを含有させた。このときの基板温度は室温であった。この後、一度大気圧に戻し、別のモリブデン製抵抗加熱ポートにDPVB iを200 mg入れ、さらに、別のモリブデン製ポートに化合物PAVB iを入れ、真空槽を1×10⁻⁴ Paまで減圧し、該正孔注入輸送層上に、第一発光層としてDPVB iを40 nm積層した。同時に、PAVB iの入ったポートを加熱し、この第一発光層にPAVB iを3モル%の割合で含有させた。この後、大気圧に戻し、新たにモリブデン製抵抗加熱ポートにAlqを200 mg入れ、モリブデン製抵抗加熱ポートにマグネシウムリポンを1 g入れ、さらにタングステンバスケットに銀ワイヤーを500 mg入れて、真空槽を1×10⁻⁴ Paまで減圧し、Alqを第二発光層として、40 nm製膜した。

着速度0.1nm/秒で膜厚150nm同時蒸着し、混合金属からなる陰極とした。この素子の初期性能の代表値及び半減寿命を、実施例1〜3と同様に求めた。その結果を第2表に示す。

【0115】実施例5

実施例1〜3と同じ形状のITO付きガラス基板と同じ洗浄工程を施し、透明電極基板とし、真空槽の基板ホルダーに設置した。モリブデン製抵抗加熱ポートにTPDを200mg入れ、さらに別のモリブデン製抵抗加熱ポートにDPVBIを200mg入れて真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。その後、TPD入りポートを215〜220℃に加熱し、TPDを蒸着速度0.1〜0.3nm/秒で透明支持基板上に蒸着して、膜厚60nmの正孔注入輸送層を製膜させた。この時の基板温度は室温であった。これを真空槽より取り出すことなく、正孔注入輸送層の上に、DPVBIの入ったポートを245℃に加熱し、第一発光層として40nm積層蒸着した。その後、真空槽を大気圧に戻し、新たにモリブデン製の抵抗加熱ポートにAlqを200mg入れて、さらに別のモリブデン製抵抗加熱ポートにルモゲンフレッド（バフス社製）を入れ、再度真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧した。次いで、ルモゲンフレッド入りのモリブデン製抵抗加熱ポートを330℃に加熱し、Alq入りのモリブデン製ポートを250℃まで加熱し、ルモゲンフレッドの含有量がAlqに対して3モル%になるように、第二発光層40nmを製膜した。その後、真空槽を大気圧に戻し、モリブデン製抵抗加熱ポートにマグネシウムを1g入れ、タングステン製バスケットに銀ワイヤーを500mg入れ、その後、真空槽を 1×10^{-4} Paまで減圧し、マグネシウムを蒸着速度1.4nm/秒、銀を蒸着速度0.1nm/秒で膜厚150nm同時蒸着し、混合金属からなる陰極とした。この素子の初期性能の代表値及び半減寿命を実施例1〜3と同様に求めた。その結果を第2表に示す。

【0116】

【表2】

第 2 表 - 1

	初 期 性 能			
	電 圧 (V)	電流密度 (mA/cm ²)	発光輝度 (cd/m ²)	発光効率 (lm/w)
実施例 1	9.5	4.5	100	0.7
実施例 2	9.5	5.0	100	0.7
実施例 3	10.0	7.0	100	0.4
実施例 4	11.0	6.5	100	0.4
実施例 5	9.8	7.5	100	0.4

【0117】

【表3】

第 2 表 - 2

	C I B 色度座標 (x, y)	半減時間 (時間)
実施例 1	(0.245, 0.278)	1.000
実施例 2	(0.245, 0.267)	800
実施例 3	(0.300, 0.320)	600
実施例 4	(0.265, 0.278)	300
実施例 5	(0.220, 0.240)	200

【0118】第2表から分かるように、実施例1〜4は、実施例5に比べて発光色の白色化及び量子収率（輝度／電流密度に相当）が向上しており、また発光安定性も向上している。

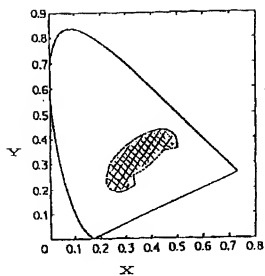
【0119】

【発明の効果】本発明の白色有機EL素子は、発光効率が高く、かつ発光安定性に優れた白色発光を呈し、各種表示装置における発光素子として好適に用いられる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 図1は、CIE色度座標における白色光の定義領域を表したグラフである。

【図1】



⊠ : C I E 座標における白色発光領域を示す。

フロントページの続き

(72)発明者 楠本 正
千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地 出光興産株
式会社内

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 06-207170

(43)Date of publication of application : 26.07.1994

(51)Int.Cl. C09K 11/06

H05B 33/14

(21)Application number : 05-290207 (71)Applicant : IDEMITSU KOSAN CO

LTD

(22)Date of filing : 19.11.1993 (72)Inventor : MATSUURA MASAHIRO

SHOJI HIROSHI

AZUMA HISAHIRO

KUSUMOTO TADASHI

(30)Priority

Priority number : 04311889

Priority date : 20.11.1992

Priority country : JP

(54) WHITE ORGANIC ELECTROLUMINESCENCE ELEMENT

(57)Abstract:

PURPOSE: To provide a new white organic electroluminescence element having a specific construction, emitting white luminescence in high luminous efficiency and stability and suitable as a light-emitting element for various displays.

CONSTITUTION: The organic electroluminescence element is produced by

sandwiching an organic compound containing luminescent layer between a pair of electrodes. At least one of the electrode is (semi)transparent. The luminescent layer has a laminated structure consisting of the 1st luminescent layer containing an organic compound having fluorescence peak wavelength of 380-480nm in solid state (e.g. the compound of formula I) and the 2nd luminescent layer containing an organic compound having a fluorescence peak wavelength of 480-580nm in solid state (preferably 8-hydroxyquinoline, etc.) laminated on the transparent electrode or anode in the order. At least one of the 1st luminescent layer, the 2nd luminescent layer and the other organic compound is incorporated with 0.1-10mol% (based on the organic compound constituting the layer) of an organic compound having fluorescence peak wavelength of 580-680nm in solution state (e.g. dicyanomethylenepyrene of formula II).

LEGAL STATUS [Date of request for examination] 13.05.1997

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 01.02.2000

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of

rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number] 3366401

[Date of registration] 01.11.2002

[Number of appeal against examiner's decision of rejection] 2000-004789

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection] 01.03.2000

[Date of extinction of right]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any
damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

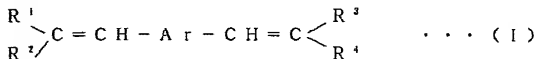
[Claim(s)]

[Claim 1] In the organic electroluminescent element which comes to pinch the organic compound layer to which at least one side contains a luminous layer in

inter-electrode [of transparence or a translucent pair] at least The first luminous layer in which, as for this luminous layer, the fluorescence peak wavelength of a solid state contains 380nm or more organic compound it is [organic compound] less than 480nm, The second luminous layer in which the fluorescence peak wavelength of a solid state contains 480nm or more organic compound it is [organic compound] less than 580nm consists of a laminated structure by which the laminating was carried out one by one from the transparent electrode or anode plate side. The fluorescence peak wavelength in a solution condition and 580nm or more organic compound it is [organic compound] 650nm or less the white organic electroluminescent element characterized by % of 0.1-10-mol the thing which you came out comparatively and was made to contain to the organic compound which was chosen from the first luminous layer of the above, the second luminous layer, and other organic compound layers, and which is further alike at least and forms the layer.

[Claim 2] The organic compound whose fluorescence peak wavelength of a solid state is 380nm or more less than 480nm is a general formula (I).

[Formula 1]



R1 -R4 shows among [type the aryloxy group of the carbon numbers 6-18 which are not permuted [the cyclohexyl radical which is not permuted / the aromatic heterocycle type machine which is not permuted / the aryl group of the carbon numbers 6-18 which are not permuted / a hydrogen atom, the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl radical of carbon numbers 7-18, a permutation, or /, a permutation, or /, a permutation, or /, a permutation, or], respectively. Here, a substituent shows the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl radical of carbon numbers 7-18, the aryloxy group of carbon numbers 6-18, the acyl group of carbon numbers 1-6, the acyloxy radical of carbon numbers 1-6, a carboxyl group, a styryl radical, the aryl carbonyl group of carbon numbers 6-20, the aryloxy carbonyl group of carbon numbers 6-20, the alkoxy carbonyl group of carbon numbers 1-6, a vinyl group, an ANIRINO carbonyl group, a carbamoyl group, a phenyl group, a nitro group, a hydroxyl group, or a halogen atom. These substituents may be single or plural is sufficient as them. Moreover, R1 -R4 Even if the same, you may differ mutually, and it is R1. R2 And R3 R4 It may combine with the radical permuted mutually and the six membered ring of the saturation which is not permuted [the five membered ring of the saturation which is not permuted / a permutation or / or partial saturation, a permutation, or] or partial saturation may be formed. Ar expresses the arylene radical of the carbon

numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or], and even if the single permutation is carried out, it carries out two or more permutations -- having --
 **** -- moreover, a binding site -- alt., Para -- meta--- any are sufficient. In addition, the substituent is the same as the above. Moreover, the substituents of an arylene radical may join together and the six membered ring of the saturation which is not permuted [the five membered ring of the saturation which is not permuted / a permutation or / or partial saturation, a permutation, or] or partial saturation may be formed. However, it is R1 -R4 when Ar is non-permuted phenylene. It is chosen out of the naphthyl group which is not permuted [the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl radical of carbon numbers 7-18, a permutation, or], a biphenyl radical, a cyclohexyl radical, and an aryloxy group, respectively.] The white organic electroluminescent element according to claim 1 which is the aromatic series methylidyne compound come out of and expressed.

[Claim 3] The organic compound whose fluorescence peak wavelength of a solid state is 380nm or more less than 480nm is a general formula (II).

A-Q-B ... Among (II) [type, A and B show the monad excluding one hydrogen atom from the compound expressed with the above-mentioned general formula (I), respectively, may be the same or may differ. Moreover, Q shows the bivalence radical which cuts conjugated system.] The white organic

electroluminescent element according to claim 1 which is the aromatic series methylidyne compound come out of and expressed.

[Claim 4] the organic compound whose fluorescence peak wavelength of a solid state is 380nm or more less than 480nm -- a general formula (III) -- [Formula 2]



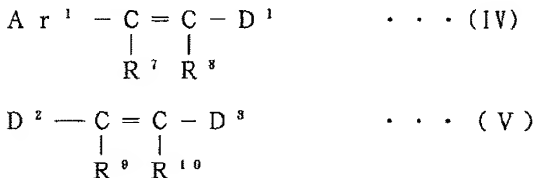
A1 shows among [type the arylene radical of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or], or the aromatic heterocycle type machine of bivalence. Any of alt., meta and Para are sufficient as a joint location. A2 The aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or] or the aromatic heterocycle type machine of monovalence is shown. R5 And R6 The aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a hydrogen atom, a permutation, or], a cyclohexyl radical, the aromatic heterocycle type machine of monovalence, the alkyl group of carbon numbers 1-10, the aralkyl radical of carbon numbers 7-20, or the alkoxy group of carbon numbers 1-10 is shown, respectively. In addition, R5 and R6 It may be the same or you may differ. Here, a substituent may be a phenyl group which it does not have or it has an alkyl group, an aryloxy group, amino groups, or these radicals, and plural is [this substituent may be single or] sufficient as it. Moreover, R5

Each substituent is A1. It may join together, the five membered ring or six membered ring of saturation or partial saturation may be formed, and it is R6 similarly. Each substituent is A2. It may join together and the five membered ring or six membered ring of saturation or partial saturation may be formed. Moreover, Q1 The bivalence radical which cuts conjugate is expressed.] The white organic electroluminescent element according to claim 1 which is the aromatic series methylidyne compound come out of and expressed.

[Claim 5] The white organic electroluminescent element according to claim 1 whose organic compound whose fluorescence peak wavelength of a solid state is 480nm or more less than 580nm is the metal complex of 8-hydroxyquinoline or its derivative.

[Claim 6] To the first luminous layer and/or the second luminous layer, it is a general formula (IV). It reaches (V).

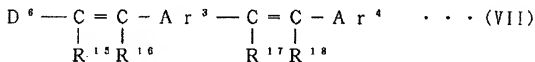
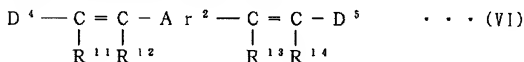
[Formula 3]



Ar1 shows the aryl group of carbon numbers 6-20 among [type. R7 -R10 show a

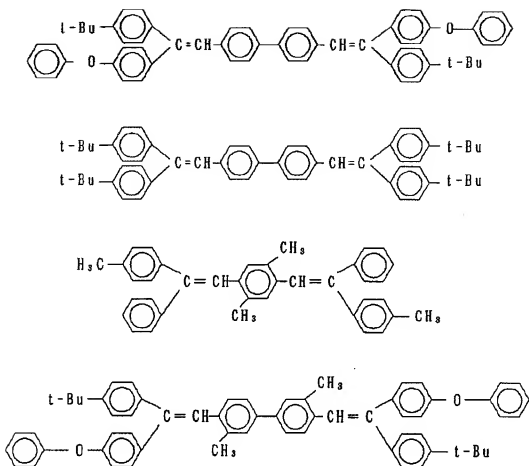
hydrogen atom or the aryl group of carbon numbers 6-20 independently, respectively. D1 - D3 The aryl group of the carbon numbers 6-20 independently permuted by the electron releasing group, respectively or the condensed multi-ring group machine of carbon numbers 10-30 is shown. Here, Ar1 and R7 -R10 could be permuted independently, respectively, and they may be permuted by the amino group which has the alkyl group of carbon numbers 1-10, the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-10, the aralkyl radical of carbon numbers 6-10, or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20.] The white organic electroluminescent element according to claim 1 which came out and was chosen from the stilbene derivatives expressed and which makes it come at least to contain a kind.

[Claim 7] To the first luminous layer and/or the second luminous layer, they are a general formula (VI) and (VII) [Formula 4].



Among [type, Ar2 and Ar3 show the arylene radical of carbon numbers 6-20 independently, respectively, and Ar4 shows the aryl group of carbon numbers 6-20. R11-R18 show a hydrogen atom or the aryl group of carbon numbers 6-20

[Formula 15]



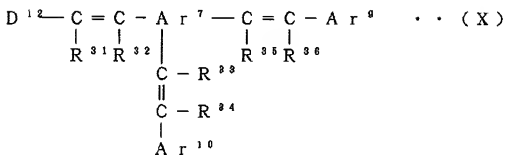
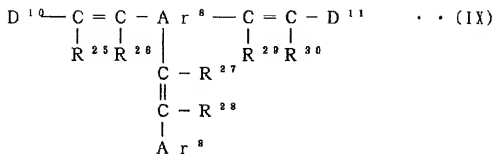
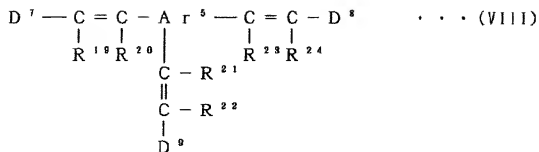
[0027]

[Formula 16]

independently, respectively. Here, Ar² -Ar⁴, and R¹¹-R¹⁸ could be permuted independently, respectively, and they may be permuted by the amino group which has the alkyl group of carbon numbers 1-10, the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-10, the ARARIKIRU radical of carbon numbers 6-10, or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20. D⁴ - D⁶ The aryl group of the carbon numbers 6-20 independently permuted by the electron releasing group, respectively or the condensed multi-ring group machine of carbon numbers 10-30 is shown.] The white organic electroluminescent element according to claim 1 which came out and was chosen from the JISUCHIRU arylene derivatives expressed and which makes it come at least to contain a kind.

[Claim 8] To the first luminous layer and/or the second luminous layer, it is general formula (VIII)- (X).

[Formula 5]



Among [type, Ar5 -Ar7 shows the trivalent aromatic series ring machine of carbon numbers 6-24 independently, respectively, and Ar8 -Ar10 shows the aryl group of carbon numbers 6-20 independently, respectively. R19-R36 show a hydrogen atom or the aryl group of carbon numbers 6-20 independently, respectively. D7 - D12 show the aryl group of the carbon numbers 6-20 independently permuted by the electron releasing group, respectively, or the condensed multi-ring group machine of carbon numbers 10-30. Here, Ar5 -Ar7,

and R19-R36 could be permuted independently, respectively, and they may be permuted by the amino group which has the alkyl group of carbon numbers 1-10, the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-10, the aralkyl radical of carbon numbers 6-10, or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20.] The white organic electroluminescent element according to claim 1 which came out and was chosen from the tris styryl arylene derivatives expressed and which makes it come at least to contain a kind.

[Claim 9] The white organic electroluminescent element according to claim 1 whose electronic transport capacity the direction of the luminous layer near a cathode side is size in the first luminous layer and the second luminous layer.

[Claim 10] The white organic electroluminescent element according to claim 1 whose thickness of the second luminous layer is more than the thickness of the first luminous layer.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Industrial Application] Luminous efficiency of this invention is high in more detail

about a new white organic electroluminescent element, and it is related with the organic electroluminescent element which presents white luminescence excellent in luminescence stability.

[0002]

[Description of the Prior Art] For self-luminescence, visibility of an electroluminescent element (EL element) is high, and since it is a perfect solid-state component, it has the description of excelling in shock resistance. Therefore, various EL elements using current, inorganic, or an organic compound are proposed, and utilization is tried. Among these components, since an organic EL device can reduce applied voltage sharply, development of various ingredient and components is furthered. Furthermore, it is effective also in lightweight-izing of display devices, such as a back light used now and a display. About the organic EL device which carries out white luminescence, although the indication of the following techniques was made conventionally, there were the following troubles plentifully. For example, in the Europe public presentation patent No. 0390551 official report, in order to incorporate a carrier by tunneling impregnation by are recording of a carrier interface, the threshold-limit-value electrical potential difference for carrying out white luminescence exists, and to below the threshold limit value, since it is not white, a gradation display is not made. In JP,3-230584,A, since it is mixed

luminescence of the fluorescence object of a two color, it does not become good white. although white luminescence is presented in JP,2-220390,A -- applied-voltage 30V -- brightness 110 cd/m² it is -- luminous efficiency is comparatively [with high driver voltage] low. In JP,4-51491,A, it is end-face luminescence structure and is unsuitable for the application as the whole field.

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] While this invention is the basis of such a situation and maintaining the property of the conventional organic EL device, luminous efficiency is high, and it is made for the purpose of offering the organic EL device which presents white luminescence excellent in luminescence stability.

[0004]

[Means for Solving the Problem] As a result of repeating research wholeheartedly that this invention persons should develop the white organic EL device which has high luminous efficiency and luminescence stability, the recombination field of an electron hole and an electron as an interface field of the first luminous layer and the second luminous layer The organic compound in the specific range in which the fluorescence peak wavelength of a solid state differs in the first luminous layer and each second luminous layer is made to contain. and by being further alike at least and making the organic compound which was

chosen from the first luminous layer, the second luminous layer, and other organic compound layers and which has the fluorescence peak wavelength in a solution condition in the specific range contain While maintaining the property of the conventional organic EL device, luminous efficiency was high and it found out that the organic EL device which presents white luminescence excellent in luminescence stability was obtained. This invention is completed based on this knowledge. Namely, this invention is set to the organic electroluminescent element which comes to pinch the organic compound layer to which at least one side contains a luminous layer in inter-electrode [of transparence or a translucent pair] at least. The first luminous layer in which, as for this luminous layer, the fluorescence peak wavelength of a solid state contains 380nm or more organic compound it is [organic compound] less than 480nm, The second luminous layer in which the fluorescence peak wavelength of a solid state contains 480nm or more organic compound it is [organic compound] less than 580nm consists of a laminated structure by which the laminating was carried out one by one from the transparent electrode or anode plate side. The fluorescence peak wavelength in a solution condition and 580nm or more organic compound it is [organic compound] 650nm or less it is further alike at least and the white organic electroluminescent element characterized by % of 0.1-10-mol the thing which you came out comparatively and was made to contain is offered to the

organic compound which was chosen from the first luminous layer of the above, the second luminous layer, and other organic compound layers and which forms the layer.

[0005] The white organic EL device of this invention has the description in the two-layer luminous layer of the first luminous layer and the second luminous layer. The organic compound 380nm or more less than (blue system) 480nm of whose fluorescence peak wavelength of a solid state is 420nm or more less than 475nm preferably is used for this first luminous layer, and the organic compound 480nm or more less than (green system) 580nm of whose fluorescence peak wavelength of a solid state is 490nm or more less than 560nm preferably is used for the second luminous layer at it. furthermore, the organic compound with which it is further alike at least with an organic compound and the fluorescence peak wavelength in a solution condition forms preferably 580nm or more 650nm or less (red system) of the layer for 585nm or more organic compound which is 620nm or less chosen from the above-mentioned luminous layer and other organic compound layers -- receiving -- 0.1-10-mol % -- it is preferably characterized by % of 0.5-5-mol the thing which you came out comparatively and was made to contain. This 0.1-10-mol % is a density range for not producing concentration quenching. In addition, in the fluorescence spectrum, the peak should just have at least one peak in each above-mentioned whole wavelength

surface region in the compound which has more than one.

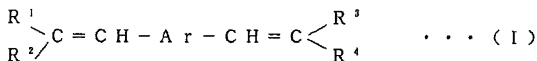
[0006] The white light by the white organic EL device of this invention can be acquired by the superposition (namely, superposition of three-primary-colors luminescence of three kinds of above-mentioned organic compounds which has specific fluorescence peak wavelength) of luminescence from the first luminous layer of the above, the second luminous layer, and a mixed component. In addition, the CIE coordinate showed the definition of the white light to drawing 1 . Here, what satisfies the fluorescence conditions of the first luminous layer of the above in the organic compound which especially the organic compound used for the first luminous layer is not limited, for example, is indicated by JP,3-231970,A or the international public presentation patent WO 92/No. 05131 official report, the Japanese-Patent-Application-No. No. 170354 [five to] specification, and the Japanese-Patent-Application-No. No. 129438 [five to] specification is mentioned. What satisfies the fluorescence conditions of the first luminous layer of the above in the compound used for the combination of what fulfills the fluorescence conditions of the first luminous layer of the above indicated by JP,3-231970,A, the international public presentation patent WO 92/No. 05131 official report, and the Japanese-Patent-Application-No. No. 170345 [five to] specification as a desirable thing, and the suitable compound indicated by the Japanese-Patent-Application-No. No. 129438 [five to] specification, and the

hole-injection transportation layer mentioned further later can be mentioned.

Next, as a compound which fulfills the fluorescence conditions of the first luminous layer of the above indicated by JP,3-231970,A and the international public presentation patent WO 92/No. 05131 official report, it is a general formula (I).

[0007]

[Formula 6]



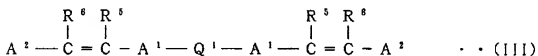
[0008] R1 -R4 shows among [type the pyridyl radical which is not permuted [the aryloxy group of the carbon numbers 6-18 which are not permuted / the cyclohexyl radical which is not permuted / the aromatic heterocycle type machine which is not permuted / the aryl group of the carbon numbers 6-18 which are not permuted / hydrogen atom, the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6 the aralkyl radical of carbon numbers 7-18, a permutation, or, a permutation, or /, a permutation, or /, a permutation, or /, a permutation, or /, respectively. Here, a substituent shows the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl radical of carbon numbers 7-18, the aryloxy group of carbon numbers 6-18, the acyl

group of carbon numbers 1-6, the acyloxy radical of carbon numbers 1-6, a carboxyl group, a styryl radical, the aryl carbonyl group of carbon numbers 6-20, the aryloxy carbonyl group of carbon numbers 6-20, the alkoxy carbonyl group of carbon numbers 1-6, a vinyl group, an ANIRINO carbonyl group, a carbamoyl group, a phenyl group, a nitro group, a hydroxyl group, or a halogen atom. These substituents may be single or plural is sufficient as them. Moreover, R1 -R4 Even if the same, you may differ mutually, and it is R1. R2 And R3 R4 It may combine with the radical permuted mutually and the six membered ring of the saturation which is not permuted [the five membered ring of the saturation which is not permuted / a permutation or / or partial saturation, a permutation, or] or partial saturation may be formed. Ar expresses the arylene radical of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or], and even if the single permutation is carried out, it carries out two or more permutations -- having -- **** -- moreover, a binding site -- alt., Para -- meta--- any are sufficient. In addition, the substituent is the same as the above. Moreover, the substituents of an arylene radical may join together and the six membered ring of the saturation which is not permuted [the five membered ring of the saturation which is not permuted / a permutation or / or partial saturation, a permutation, or] or partial saturation may be formed. However, it is R1 -R4 when Ar is non-permuted phenylene. It is chosen out of the naphthyl group which is not permuted [the

alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl radical of carbon numbers 7-18, a permutation, or], a biphenyl radical, a cyclohexyl radical, and an aryloxy group, respectively.] The aromatic series methyldiyne compound, general formula (II) which are come out of and expressed

A-Q-B ... Among (II) [type, A and B show the monad excluding one hydrogen atom from the compound expressed with the above-mentioned general formula (I), respectively, may be the same or may differ. Moreover, Q shows the bivalence radical which cuts conjugated system.] The aromatic series methyldiyne compound and general formula [0009] which are come out of and expressed (III)

[Formula 7]



[0010] A1 shows among [type the arylene radical of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or], or the aromatic heterocycle type machine of bivalence. Any of alt., meta and Para are sufficient as a joint location. A2 The aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or] or the aromatic heterocycle type machine of monovalence is shown. R5 And R6 The aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not

permuted [a hydrogen atom, a permutation, or], a cyclohexyl radical, the aromatic heterocycle type machine of monovalence, the alkyl group of carbon numbers 1-10, the aralkyl radical of carbon numbers 7-20, or the alkoxy group of carbon numbers 1-10 is shown, respectively. In addition, R5 and R6 It may be the same or you may differ. Here, a substituent may be a phenyl group which it does not have or it has an alkyl group, an aryloxy group, amino groups, or these radicals, and plural is [this substituent may be single or] sufficient as it. R5 Each substituent is A1. It may join together, the five membered ring or six membered ring of saturation or partial saturation may be formed, and it is R6 similarly. Each substituent is A2. It may join together and the five membered ring or six membered ring of saturation or partial saturation may be formed. Moreover, Q1 It is the same as the above.] It comes out and the aromatic series methylidyne compound expressed is mentioned.

[0011] here -- R1 -R4 in a general formula (I) Like the above-mentioned, it may be the same or you may differ. Respectively A hydrogen atom, the alkyl group of carbon numbers 1-6 (a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, an isopropyl group, n-butyl, an isobutyl radical, sec-butyl, tert-butyl, an isopentyl radical, t-pentyl radical, a neopentyl radical, iso hexyl group), The alkoxy group of carbon numbers 1-6 (a methoxy group, an ethoxy radical, a propoxy group, butoxy radical, etc.), The aralkyl radicals (benzyl, phenethyl radical, etc.) of

carbon numbers 7-18, the aryl group of carbon numbers 6-18 (a phenyl group, a biphenyl radical, naphthyl group, etc.), A cyclohexyl radical, an aromatic heterocycle type machine (a pyridyl radical, quinolyl radical), and the aryloxy groups (a phenoxy group, a biphenyl oxy-radical, naphthyloxy radical, etc.) of carbon numbers 6-18 are shown.

[0012] Moreover, R1 -R4 What the substituent combined with these may be used. Namely, R1 -R4 A substituent content phenyl group, a substituent content aralkyl radical, a substituent content cyclohexyl radical, a substituent content biphenyl radical, and a substituent content naphthyl group are shown, respectively. Here A substituent The alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl radical of carbon numbers 7-18, the aryloxy group of carbon numbers 6-18, the acyl group of carbon numbers 1-6, the acyloxy radical of carbon numbers 1-6, a carboxyl group, a styryl radical, They are the aryl carbonyl group of carbon numbers 6-20, the aryloxy carbonyl group of carbon numbers 6-20, the alkoxy carbonyl group of carbon numbers 1-6, a vinyl group, an ANIRINO carbonyl group, a carbamoyl group, a phenyl group, a nitro group, a hydroxyl group, or a halogen atom. Two or more permutations may be carried out. Therefore, for example, a substituent content aralkyl radical An alkyl group permutation aralkyl radical (a methylbenzyl radical, methylphenethyl radical, etc.), An alkoxy group permutation aralkyl radical (a

methoxybenzyl radical, ethoxy phenethyl radical, etc.), An aryloxy group permutation aralkyl radical (a phenoxybenzyl radical, naphthylloxy phenethyl radical, etc.), Phenyl group permutation aralkyl radicals (phenyl phenethyl radical etc.) and the above-mentioned substituent content phenyl group An alkyl group permutation phenyl group (a tolyl group, a dimethylphenyl radical, ethyl phenyl group, etc.), They are alkoxy group permutation phenyl group (methoxyphenyl radical, ethoxy phenyl group, etc.) aryloxy group permutation phenyl groups (a phenoxyphenyl radical, naphthylloxy phenyl group, etc.) or a phenyl group permutation phenyl group (that is, biphenyl radical). Moreover, substituent content cyclohexyl radicals are alkyl group permutation cyclohexyl radicals (a methylcyclohexyl radical, a dimethyl cyclohexyl radical, ethyl cyclohexyl radical, etc.), alkoxy group permutation cyclohexyl radicals (a methoxy cyclohexyl radical, ethoxy cyclohexyl radical, etc.) or an aryloxy group permutation cyclohexyl radical (a phenoxy cyclohexyl radical, naphthylloxy cyclohexyl radical), and a phenyl group permutation cyclohexyl radical (phenyl cyclohexyl radical). Substituent content naphthyl groups are alkyl group permutation naphthyl groups (a methyl naphthyl group, dimethyl naphthyl group, etc.), alkoxy group permutation naphthyl groups (a methoxy naphthyl group, ethoxy naphthyl group, etc.) or an aryloxy group permutation naphthyl group (a phenoxy naphthyl group, naphthylloxy naphthyl group), and a phenyl group

permutation naphthyl group (phenyl naphthyl group).

[0013] above-mentioned R1 -R4 ***** -- the alkyl group of carbon numbers 1-6, an aryloxy group, a phenyl group, a naphthyl group, a biphenyl radical, and a cyclohexyl radical are desirable respectively among what was mentioned above. Any which are not permuted [a permutation or] are sufficient as these. Moreover, R1 -R4 Even if the same, you may differ mutually, and it is R1. R2 And R3 R4 It may combine with the radical permuted mutually and the six membered ring of the saturation which is not permuted [the five membered ring of the saturation which is not permuted / a permutation or / or partial saturation, a permutation, or] or partial saturation may be formed.

[0014] On the other hand, Ar in a general formula (I) expresses the arylene radical of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or], are arylene radicals, such as the phenylene group which is not permuted [a permutation or], a biphenylene radical, p-Tell phenylene group, a naphthylene radical, a terphenylene radical, a naphthalene diyl radical, an anthracene diyl radical, a phenanthrene diyl radical, and a phenalene diyl radical, and may be permuted also in no permuting. Moreover, the joint location of methylidyne ($=C=CH-$) of alt., meta and Para etc. is good anywhere. However, it is R1 -R4 when Ar is non-permuted phenylene. It is chosen out of the naphthyl group which is not permuted [the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aralkyl

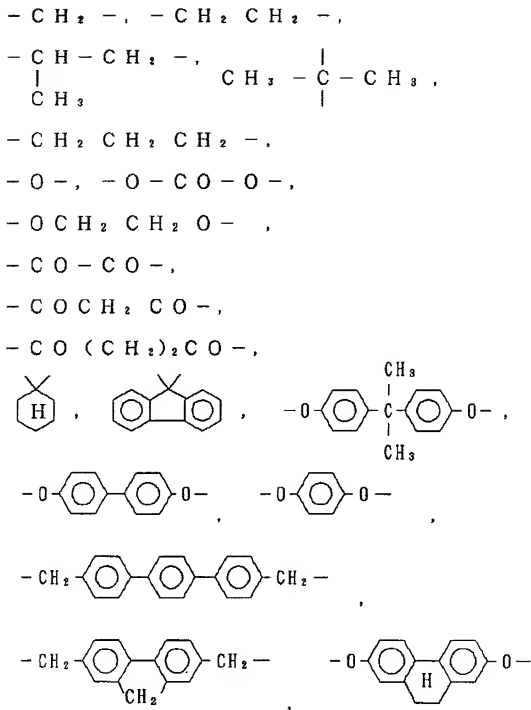
radical of carbon numbers 7-18, a permutation, or], a biphenyl radical, a cyclohexyl radical, and an aryloxy group. A substituent An alkyl group (a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, an isopropyl group, n-butyl, an isobutyl radical, sec-butyl, t-butyl, an isopentyl radical, t-pentyl radical, a neopentyl radical, iso hexyl group, etc.), An alkoxy group (a methoxy group, an ethoxy radical, a propoxy group, an isopropoxy group, a butyloxy radical, an isobutyloxy radical, a sec-butyloxy radical, t-butyloxy radical, an isopentyloxy radical, t-pentyloxy radical), Aryloxy groups (a phenoxy group, naphthyloxy radical, etc.), an acyl group (a formyl group, an acetyl group, a propionyl radical, butyryl radical, etc.), An acyloxy radical, an aralkyl radical (benzyl, phenethyl radical, etc.), It is a phenyl group, a hydroxyl group, a carboxyl group, an ANIRINO carbonyl group, a carbamoyl group, an aryloxy carbonyl group, a methoxycarbonyl group, an ethoxycarbonyl radical, a butoxycarbonyl radical, a nitro group, and a halogen atom, and two or more permutations may be carried out also in the single permutation.

[0015] The methylidyne aromatic compound expressed with said general formula (I) has two methylidyne ($=C=CH-$) radicals, and the combination of four kinds of combination, i.e., a cis-cis- , transformer-cis- , cis-transformer, and a transformer-transformer is in 1 molecule by the geometrical isomerism of this methylidyne radical. The first luminous layer in the EL element of this invention

may be which those things, and what the geometrical isomer mixed is sufficient as it. It is the thing of a transformer object altogether especially preferably. Moreover, it may join together between substituents and the above-mentioned substituent may form the five membered ring or six membered ring of the saturation which is not permuted [a permutation and] or partial saturation.

[0016] A and B in a general formula (II) show the monad excluding one hydrogen atom from the compound expressed with the above-mentioned general formula (I), respectively, may be the same or may differ. Here, Q in a general formula (II) shows the bivalence radical which cuts conjugated system. Here, conjugate contains what depends on the un-existing-locally nature of a pi electron, and is depended on conjugated double bond, an unpaired electron, or a lone-pair electrons. As an example of Q, it is [0017].

[Formula 8]



[0018] ***** Thus, the reason using the radical of the bivalence which cuts conjugated system is for making it EL luminescent color obtained when A or B

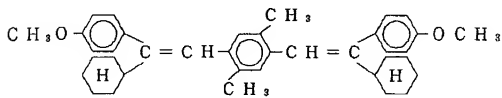
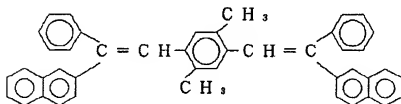
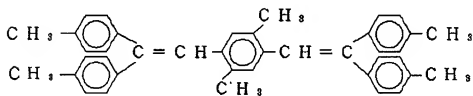
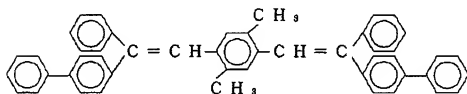
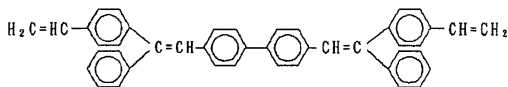
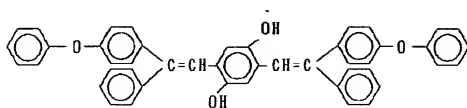
(namely, compound of a general formula (I)) shown above is independently used as an organic EL device of this invention, and EL luminescent color obtained when the compound expressed with a general formula (II) is used as an organic EL device of this invention not change. That is, it is for making it short wavelength-ization or not form [of the first luminous layer expressed with a general formula (I) or a general formula (II)] long wavelength. Moreover, if it connects by the bivalence radical which cuts conjugated system, it can check going up, a uniform pinhole free-lancer's microcrystal or amorphous nature thin film can be obtained, and glass transition temperature (T_g) will raise luminescence homogeneity. Furthermore, composition or purification is equipped with the advantage made easily, without EL luminescence forming long wavelength by having joined together by the bivalence radical which cuts conjugated system.

[0019] Moreover, A1 in a general formula (III) The arylene radical of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or] or the aromatic heterocycle type machine of bivalence, and A2 The aryl groups (a phenyl group, a biphenyl radical, naphthyl group, etc.) of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or] or the aromatic heterocycle type machine of monovalence is shown. R5 And R6 They are the aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a hydrogen atom, a permutation, or], a

cyclohexyl radical, the aromatic heterocycle type machine of monovalence, and the alkyl group () of carbon numbers 1-10, respectively. [a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, an isopropyl group, n-butyl, an isobutyl radical] [sec] - Butyl, tert-butyl, an isopentyl radical, t-pentyl radical, a neopentyl radical, an iso hexyl group, etc., The aralkyl radicals (benzyl, phenethyl radical, etc.) of carbon numbers 7-20 or the alkoxy groups (a methoxy group, an ethoxy radical, a propoxy group, butoxy radical, etc.) of carbon numbers 1-10 are shown. In addition, R5 and R6 It may be the same or you may differ. Here, a substituent may be a phenyl group which it does not have or it has an alkyl group, an aryloxy group, amino groups, or these radicals, and plural is [this substituent may be single or] sufficient as it. R5 Each substituent is A1. It may join together, the five membered ring or six membered ring of saturation or partial saturation may be formed, and it is R6 similarly. Each substituent is A2. It may join together and the five membered ring or six membered ring of saturation or partial saturation may be formed. Moreover, Q expresses the bivalence radical which cuts conjugate like the above. furthermore -- this -- A1 Any of alt., meta and Para are sufficient as association. Furthermore, in this invention, the organic compound expressed with a general formula (I), an above-mentioned general formula (II), or an above-mentioned general formula (III) needs to be the compound which presents luminescence of the purple-blue in a CIE chromaticity coordinate,

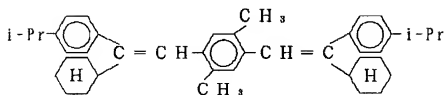
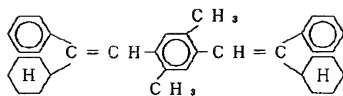
purple/blue, blue, copper rust, or bluish green. Specifically, it is [0020].

[Formula 9]

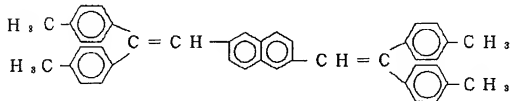
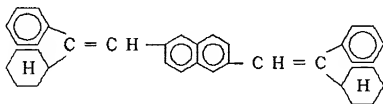
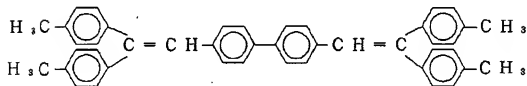
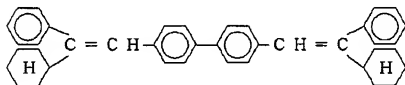
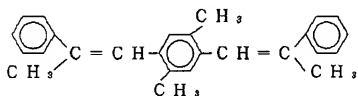


[0021]

[Formula 10]

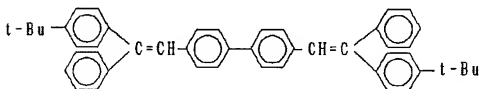
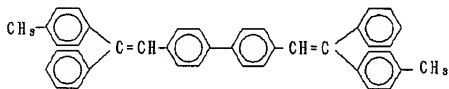
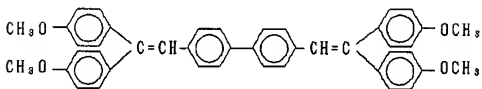
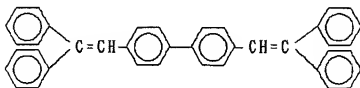
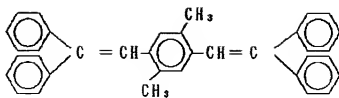


i-Pr : イソプロピル基, 以下同様

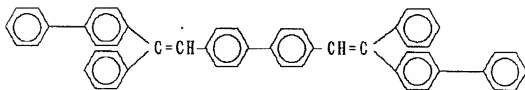


[0022]

[Formula 11]

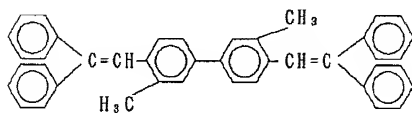
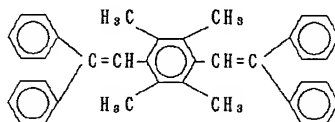
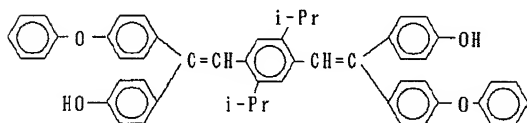
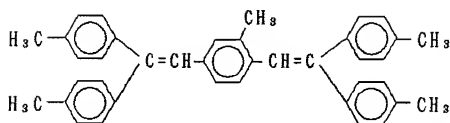
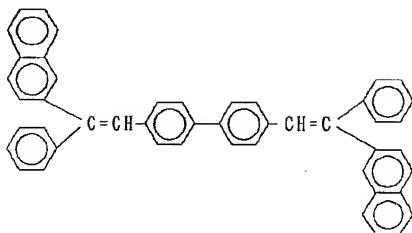


t-Bu: t-ブチル基, 以下同様



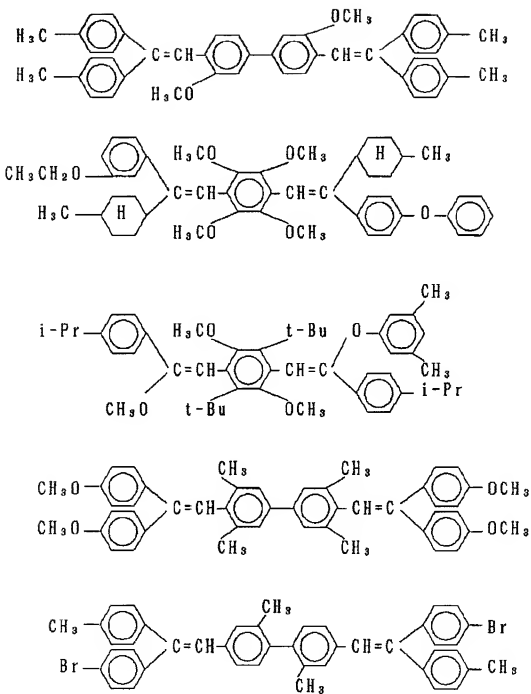
[0023]

[Formula 12]



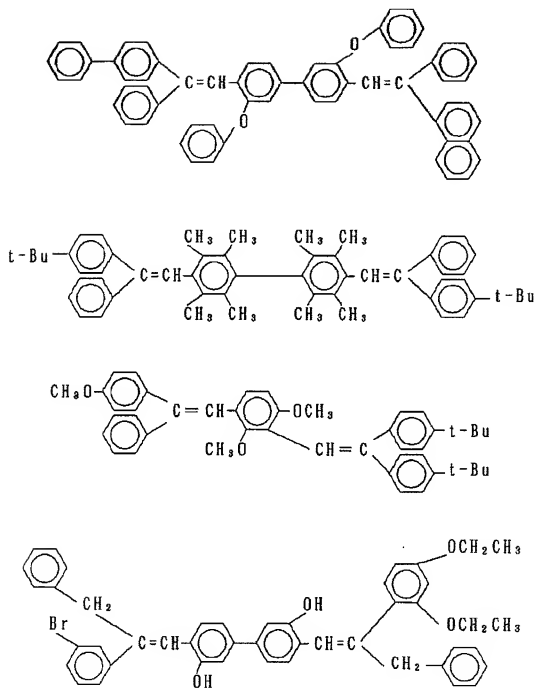
[0024]

[Formula 13]

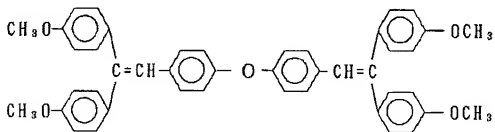
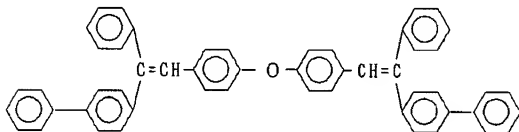
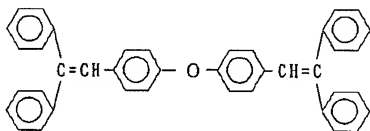
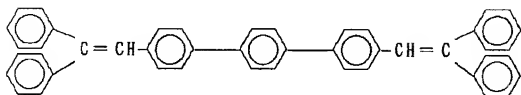
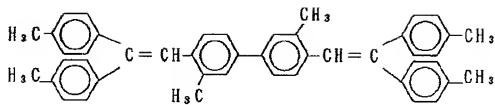


[0025]

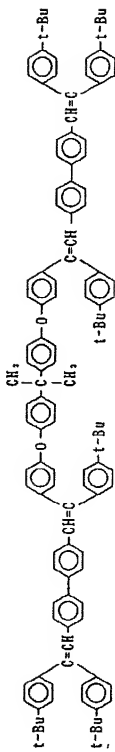
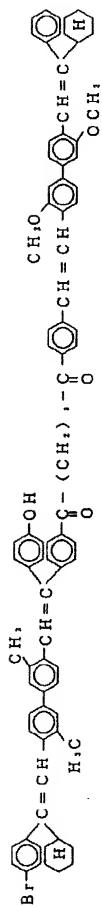
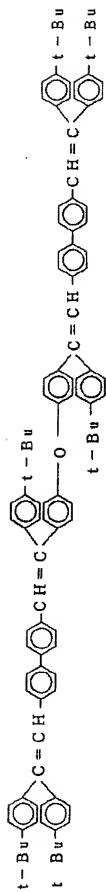
[Formula 14]



[0026]

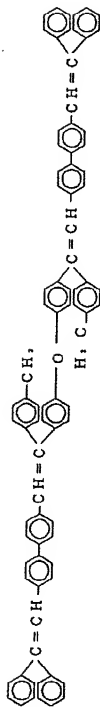
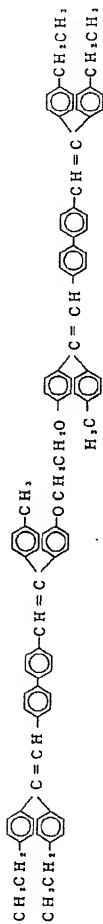


[Formula 17]



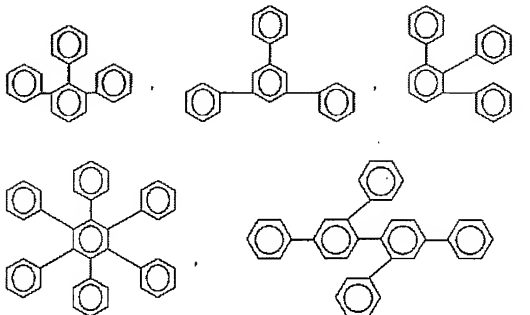
[0029]

[Formula 18]



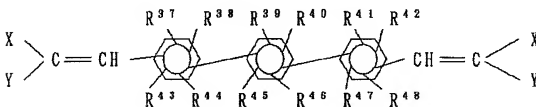
[0030] It is ****. As other organic compounds, it is [0031].

[Formula 19]



[0032] **** is also mentioned. Moreover, as a compound which fulfills the fluorescence conditions of the first luminous layer of the above indicated by the Japanese-Patent-Application-No. No. 170354 [five to] specification, it is general formula (XI) [0033].

[Formula 20]

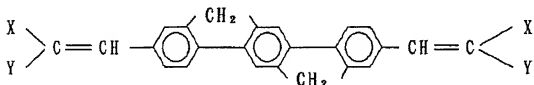


[0034] R37-R48 show a hydrogen atom or the alkyl group of carbon numbers 1-6 independently among [type, respectively. However, at least one of R37-R48 is the alkyl group of carbon numbers 1-6. Moreover, it may join together mutually and R38, R39 and R40, R41 and R44, and R45, R46 and R47 may form the five membered ring or six membered ring of saturation or partial saturation. X and Y show independently the aryl group of the carbon numbers 6-20 which are not permuted [a permutation or], respectively. X and Y may combine with a substituent and may form the five membered ring or six membered ring of the saturation which is not permuted [a permutation or] or partial saturation. Here, as a substituent, the alkyl group of carbon numbers 1-6, the alkoxy group of carbon numbers 1-6, the aryloxy group of carbon numbers 6-18, a phenyl group, the amino group, a cyano group, a nitro group, a hydroxyl group, or a halogen atom is shown. Even if single, two or more permutations of these substituents may be carried out.] It can come out and the styryl compound of the terphenylene derivative expressed can be mentioned.

[0035] Here, in a general formula (XI), R37-R48 show the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a hydrogen atom or a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, an isopropyl group, n-butyl, an isobutyl radical, sec-butyl, t-butyl, an isopentyl radical, t-pentyl radical, a neopentyl radical, n-hexyl group, and an iso hexyl group, independently, respectively. However, at least one of R37-R48

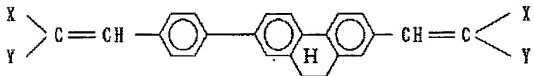
is the alkyl group of carbon numbers 1-6, and especially its methyl group or ethyl group is desirable. Moreover, it may join together mutually and R38, R39 and R40, R41 and R44, and R45, R46 and R47 may form the six membered ring of the five membered ring of saturation or partial saturation, saturation, or partial saturation. As an example of the styryl compound which has the five membered ring or six membered ring of saturation or partial saturation, when R38, R39, and R46 and R47 form a saturation five membered ring, it is [0036].

[Formula 21]



[0037] It is [0038], when **** is mentioned and it forms a saturation six membered ring by R46 and R47.

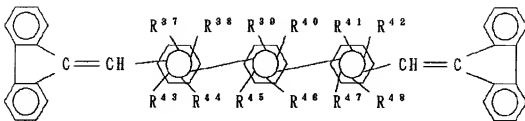
[Formula 22]



[0039] **** is mentioned. X and Y show independently aryl groups of carbon numbers 6-20, such as the phenyl group which is not permuted [a permutation or], a naphthyl group, a biphenyl radical, a terphenyl radical, an ANTORARIRU

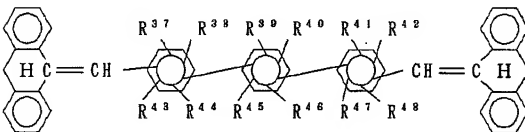
radical, a phenan tolyl group, a pyrenyl radical, and a peri RENIRU radical, respectively. Here as a substituent For example, the alkyl group of the carbon numbers 1-6, such as a methyl group, an ethyl group, n-propyl group, an isopropyl group, n-butyl, an isobutyl radical, sec-butyl, t-butyl, an isopentyl radical, t-pentyl radical, a neopentyl radical, n-hexyl group, and an iso hexyl group, The alkoxy group of the carbon numbers 1-6, such as a methoxy group, an ethoxy radical, n-propoxy group, an isopropoxy group, n-butyloxy radical, an isobutyloxy radical, a sec-butyloxy radical, an isopentyloxy radical, a t-pentyloxy radical, and an n-hexyloxy radical, The aryloxy group of carbon numbers 6-18, a phenyl group, the amino group, a cyano group, a nitro group and hydroxyl groups, such as a phenoxy group and a naphthyloxy radical, or a halogen atom is mentioned. Even if single, two or more permutations of these substituents may be carried out. Moreover, X and Y may combine with a substituent and may form the six membered ring of the five membered ring of the saturation which is not permuted [a permutation or] or partial saturation, saturation, or partial saturation. As an example of the styryl compound which has the five membered ring or six membered ring of saturation or partial saturation, when X and Y form a saturation five membered ring, it is [0040].

[Formula 23]



[0041] It is [0042], when **** is mentioned and X and Y carry out saturation six membered ring formation.

[Formula 24]



[0043] **** is mentioned.

[0044] The styryl compound expressed with the above-mentioned general formula (XI) can be manufactured by various well-known approaches. Specifically, the following two approaches are mentioned.

Approach 1 general formula (a)

[0045]

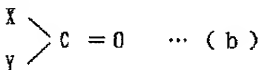
[Formula 25]



[0046] R shows the alkyl group or phenyl group of carbon numbers 1-4 among [type, and R37-R48 are the same as the above.] The phosphonate come out of and expressed, and a general formula (b)

[0047]

[Formula 26]

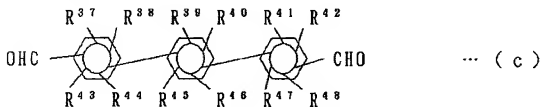


[0048] X and Y are the same as the above among [type.] It is compoundable by the approach (a Wittig reaction or Wittig-Horner reaction) of coming out and condensing the carbonyl compound expressed under base existence.

Approach 2 general formula (c)

[0049]

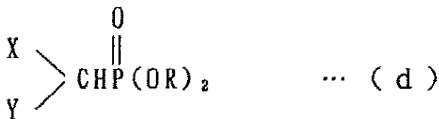
[Formula 27]



[0050] R37-R48 are the same as the above among [type.] The dialdehyde compound and general formula (d) which are come out of and expressed

[0051]

[Formula 28]



[0052] R, X, and Y are the same as the above among [type.] It is compoundable by the approach (a Wittig reaction or Wittig-Horner reaction) of coming out and condensing the phosphonate expressed under base existence.

[0053] As a reaction solvent used by this composition, a hydrocarbon, alcohols, and ether are desirable. Specifically, methanol; ethanol; isopropanol; butanol; 2-methoxyethanol; 1, 2-dimethoxyethane; bis(2-methoxy ethyl) ether; dioxane; tetrahydrofuran; toluene; xylene; dimethyl sulfoxide; N,N-dimethylformamide; N-methyl pyrrolidone; 1,3-dimethyl-2-imidazolidinone, etc. are mentioned. Especially, a tetrahydrofuran and dimethyl sulfoxide are suitable. Moreover, as a condensing agent, a sodium hydroxide, a potassium hydroxide, sodium amide, sodium hydride, n-butyl lithium, sodium methylate, potassium-t-butoxide, etc. are desirable, and n-butyl lithium and potassium-t-butoxide is especially desirable. Although reaction temperature changes with classes of reaction raw material to be used etc. and cannot be

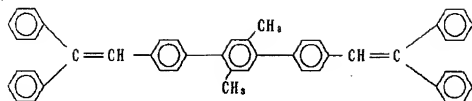
defined uniquely, it can usually specify the large area to 0 degree C - about 100 degrees C. It is the range of 0 degree C - a room temperature especially preferably.

[0054] Although example [of the above-mentioned styryl compound used for below by this invention] (1) - (26) is mentioned, this invention is not limited to them.

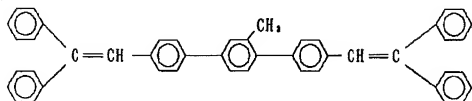
[0055]

[Formula 29]

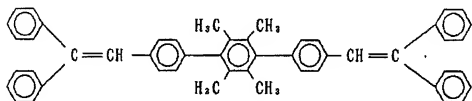
(1)



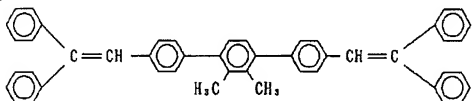
(2)



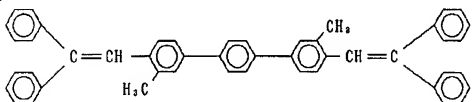
(3)



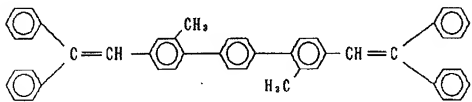
(4)



(5)



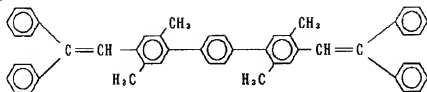
(6)



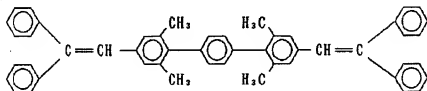
[0056]

[Formula 30]

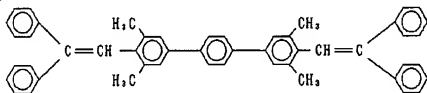
(7)



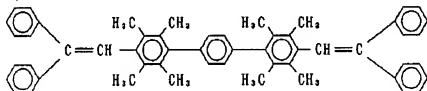
(8)



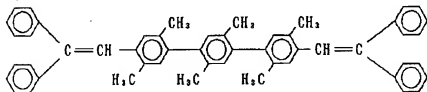
(9)



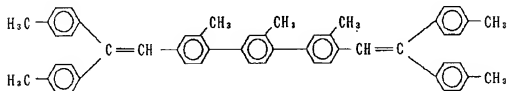
(1 0)



(1 1)



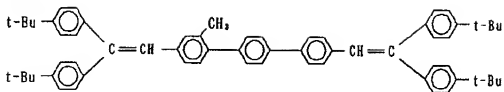
(1 2)



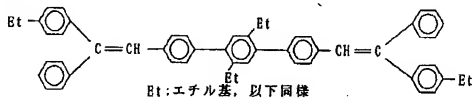
[0057]

[Formula 31]

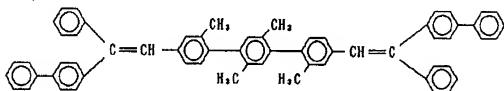
(1 3)



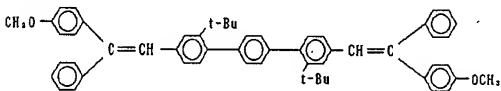
(1 4)



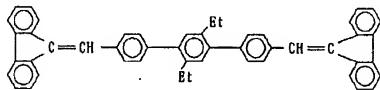
(1 5)



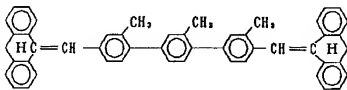
(1 6)



(1 7)



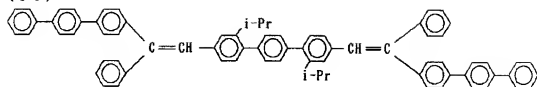
(1 8)



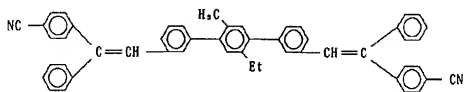
[0058]

[Formula 32]

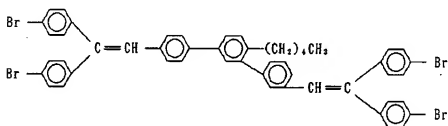
(1 9)



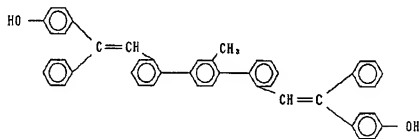
(2 0)



(2 1)



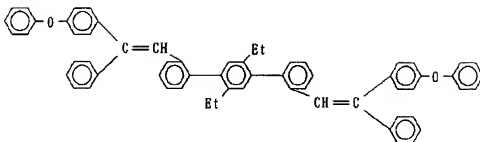
(2 2)



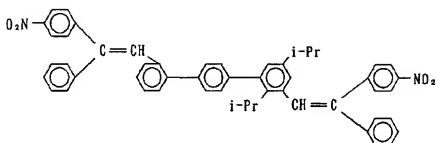
[0059]

[Formula 33]

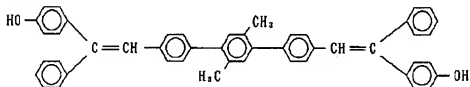
(2 3)



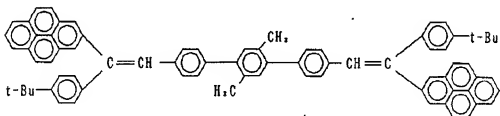
(2 4)



(2 5)



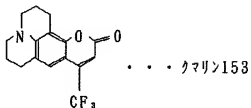
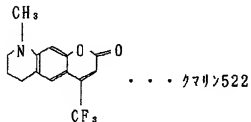
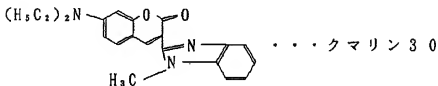
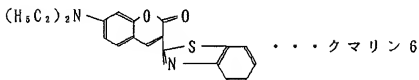
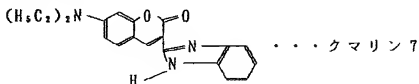
(2 6)



[0060] On the other hand, about the organic compound which is used for the second luminous layer and whose fluorescence peak wavelength of a solid state is 480nm or more less than 580nm, the coumarin derivative used as laser coloring matter which especially a limit does not have, for example, is indicated

by the Europe public presentation patent No. 0281381 official report is mentioned. Specifically, it is [0061].

[Formula 34]



[0062] It is ****. Furthermore, what satisfies the fluorescence conditions of the second luminous layer of the above in the organic compound indicated by JP,3-231970,A or the Japanese-Patent-Application-No. No. 279304 [two to] specification is mentioned. Furthermore, the metal complex of 8-hydroxyquinoline or its derivative can be mentioned as a desirable thing. Specifically, it is a metal chelate oxy-NOIDO compound containing the chelate of

an oxine (generally an eight quinolinol or 8-hydroxyquinoline). Such a compound shows the engine performance of a high level, and is easily fabricated by the thin film gestalt. The example of an oxy-NOIDO compound fills the following structure expression.

[0063]

[Formula 35]



[0064] Mt expresses a metal among [type, n is the integer of 1-3, and the atom which needs Z in order the location is independent in each and to complete at least two or more fused aromatic rings is shown.] Here, the metal expressed with Mt can be used as monovalence, bivalence, or a trivalent metal, and are earth metals, such as alkaline earth metal, such as alkali metal, such as a lithium, sodium, or a potassium, magnesium, or calcium, boron, or aluminum. Each the monovalence, the bivalence, or the trivalent metal known as it is generally a useful chelate compound can be used.

[0065] Moreover, Z shows the atom in which the heterocycle which one side of at least two or more fused aromatic rings becomes from azole or an azine is made

to form. Here, if required, it is possible to add the ring from which others differ to the above-mentioned fused aromatic ring. Moreover, in order to avoid adding a ***** molecule, with no improvement on a function, as for the number of the atoms shown by Z, maintaining or less to 18 is desirable.

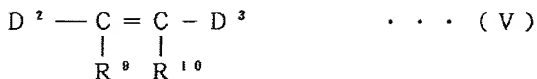
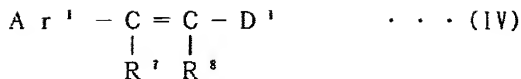
[0066] Furthermore, if a chelation oxy-NOIDO compound is illustrated concretely Tris Aluminum, a screw (Eight quinolinol) Magnesium, a screw (Eight quinolinol) Zinc, a screw (Eight quinolinol) Zinc, a screw (2-methyl-eight quinolinol) Zinc, a screw (Benzo-eight quinolinol) (2-methyl-8-quinolilato)aluminumoxide, a tris (eight quinolinol) indium, tris (5-methyl-eight quinolinol) aluminum, an eight-quinolinol lithium, a tris (5-chloro-eight quinolinol) gallium, tris A gallium, a screw (2-methyl-eight quinolinol) Calcium, 5, 7-dichloro-eight-quinolinol aluminum, tris (5, 7-dibromo-8-hydroxy quinolinol) aluminum, tris (7-propyl-eight quinolinol) aluminum, a screw (5-chloro-eight quinolinol) (Eight quinolinol) There are beryllium, bis(2-methyl-eight quinolinol) beryllium, etc.

[0067] In the white organic EL device of this invention, it is desirable to make [as which it was chosen from the stilbene derivative indicated by said first luminous layer and/or second luminous layer at the Japanese-Patent-Application-No. No. 129438 / five to / specification, the JISUCHIRIRU arylene derivative, and the tris styryl arylene derivative] a kind contain at least. This stilbene derivative is a compound which has at least two aromatic series rings, combines these

aromatic series ring by the vinyl group or the permuted vinyl group, and is constituted, and has an electron releasing group in either the above-mentioned aromatic series ring or a vinyl group. A JISUCHIRIRU arylene derivative is a compound which two aromatic series rings combine with one arylene radical through a vinyl group or a permutation vinyl group, and has an electron releasing group. A tris styryl arylene derivative is a compound which three aromatic series rings combine with one trivalent aromatic series ring machine through a vinyl group or a permutation vinyl group, and has an electron releasing group. In said derivative which has an electron releasing group in a molecule frame, this electron releasing group shows the amino group which has the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-10, and the hydrocarbon group of carbon numbers 1-30 preferably. In the above-mentioned derivative, especially a desirable thing is a compound expressed with following general formula (IV)- (X), (IV) and (V) express a stilbene derivative, (VI), and (VII) a JISUCHIRIRU arylene derivative, and (VIII)- (X) expresses a tris styryl arylene derivative.

[0068]

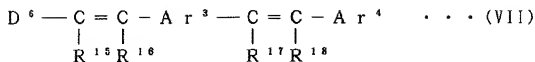
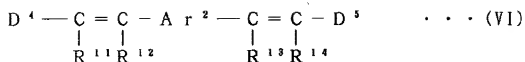
[Formula 36]



[0069] Ar¹ shows the aryl group of carbon numbers 6-20 among [type. R⁷ -R¹⁰ show a hydrogen atom or the aryl group of carbon numbers 6-20 independently, respectively. D¹ - D³ The aryl group of the carbon numbers 6-20 independently permuted by the electron releasing group, respectively or the condensed multi-ring group machine of carbon numbers 10-30 is shown. Here, Ar¹ and R⁷ -R¹⁰ could be permuted independently, respectively, and they may be permuted by the amino group which has the alkyl group of carbon numbers 1-10, the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-10, the aralkyl radical of carbon numbers 6-10, or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20. Moreover, this substituent may join together mutually and may form the five membered ring thru/or six membered ring of saturation or partial saturation.]

[0070]

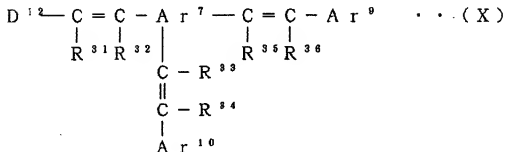
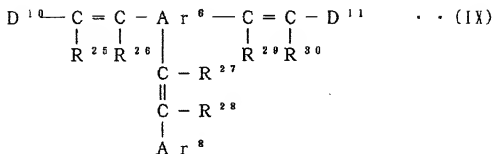
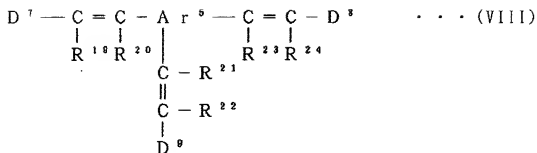
[Formula 37]



[0071] Among [type, Ar2 and Ar3 show the arylene radical of carbon numbers 6-20 independently, respectively, and Ar4 shows the aryl group of carbon numbers 6-20. R11-R18 show a hydrogen atom or the aryl group of carbon numbers 6-20 independently, respectively. Here, Ar2 -Ar4, and R11-R18 could be permuted independently, respectively, and they may be permuted by the amino group which has the alkyl group of carbon numbers 1-10, the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-10, the aralkyl radical of carbon numbers 6-10, or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20. Moreover, these substituents may join together mutually and may form the five membered ring thru/or six membered ring of saturation or partial saturation. D4 - D6 The aryl group of the carbon numbers 6-20 independently permuted by the electron releasing group, respectively or the condensed multi-ring group machine of carbon numbers 10-30 is shown.]

[0072]

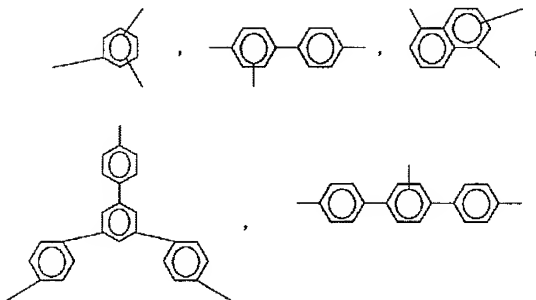
[Formula 38]



[0073] Among [type, Ar5 -Ar7 shows the trivalent aromatic series ring machine of carbon numbers 6-24 independently, respectively, and Ar8 -Ar10 shows the aryl group of carbon numbers 6-20 independently, respectively. R19-R36 show a hydrogen atom or the aryl group of carbon numbers 6-20 independently, respectively. D7 - D12 show the aryl group of the carbon numbers 6-20 independently permuted by the electron releasing group, respectively, or the condensed multi-ring group machine of carbon numbers 10-30. Here, Ar5 -Ar7, and R19-R36 could be permuted independently, respectively, and they may be

permuted by the amino group which has the alkyl group of carbon numbers 1-10, the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aralkyl radical of carbon numbers 6-10, the arylated alkyl radical of carbon numbers 6-10, or the hydrocarbon group of carbon numbers 1-20. Moreover, these substituents may join together mutually and may form the five membered ring thru/or six membered ring of saturation or partial saturation.] As an aryl group in above-mentioned general formula (IV)- (X), a phenyl group, a biphenyl radical, a naphthyl group, a pyrenyl radical, a TAFENIRUIRU radical, an anthranil, a tolyl group, a xylyl group, a stilbenyl radical, a thienyl group, a bithienyl radical, a thiophene radical, a bithiophene radical, a TACHIOFEN radical, etc. are mentioned preferably. As an arylene radical, a phenylene group, a biphenylene radical, a naphthylene radical, an anthra NIREN radical, a terphenylene radical, a pyrenylene radical, a still BENIREN radical, a thienylene radical, a BICHNIENIREN radical, etc. are mentioned preferably. A trivalent aromatic series ring machine is [0074] preferably.

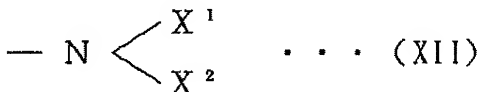
[Formula 39]



[0075] *****. Moreover, as an aryloxy group which is the above-mentioned substituent, a phenyloxy radical, a biphenyl oxy-radical, a naphthyloxy radical, an anthranil oxy-radical, a terphenyl oxy-radical, a pyrenyl oxy-radical, etc. are mentioned, and a methyl group, an ethyl group, an isopropyl group, TASHARU butyl, a pentyl radical, a hexyl group, etc. are mentioned as an alkyl group. As an alkoxy group, a methoxy group, an ethoxy radical, an isopropoxy group, a TASHARU butoxy radical, a pentyloxy radical, etc. are mentioned, and a dimethylamino radical, a diethylamino radical, a diphenylamino radical, a phenyl ethylamino radical, a phenyl methylamino radical, a ditolylamino radical, an ethyl phenylamino radical, the phenyl naphthyl amino group, the phenyl biphenyl amino group, etc. are mentioned as an amino group which has a hydrocarbon group. D1 in said general formula (IV)- (X) - D12 are the aryl group of the carbon

numbers 1-20 permuted by the electron releasing group, or the condensed multi-ring group machine of carbon numbers 10-30. Here, with an electron releasing group, the amino group which has the alkoxy group of carbon numbers 1-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-20, and the hydrocarbon group of carbon numbers 1-30 preferably is mentioned, and the amino group which has the hydrocarbon group of carbon numbers 1-30 preferably especially is mentioned. As this amino group, it is a general formula (XII) [0076].

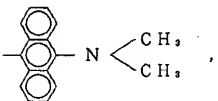
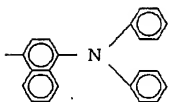
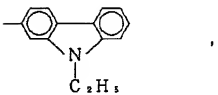
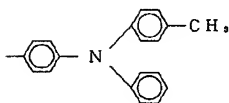
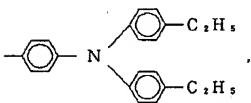
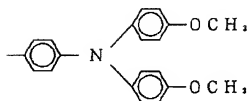
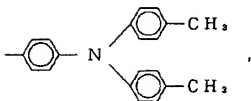
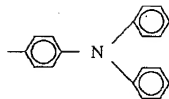
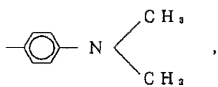
[Formula 40]



[0077] Among [type, the aryl group of carbon numbers 6-20, the alkyl group of carbon numbers 1-10, or the aralkyl radical of carbon numbers 6-20 may be shown independently, respectively, it may join together mutually, and X1 and X2 may form the cyclic structure of saturation or partial saturation. X1 and X2 **** – the alkyl group of carbon numbers 1-10, the aralkyl radical of carbon numbers 7-10, the aryloxy group of carbon numbers 6-10, or the alkoxy group of carbon numbers 6-10 may permute. [moreover,] Furthermore, X1 as an aryl group permuted by the amino group expressed with a general formula (XII) X2 You may become the nitrogen-containing aromatic series ring machine united [each

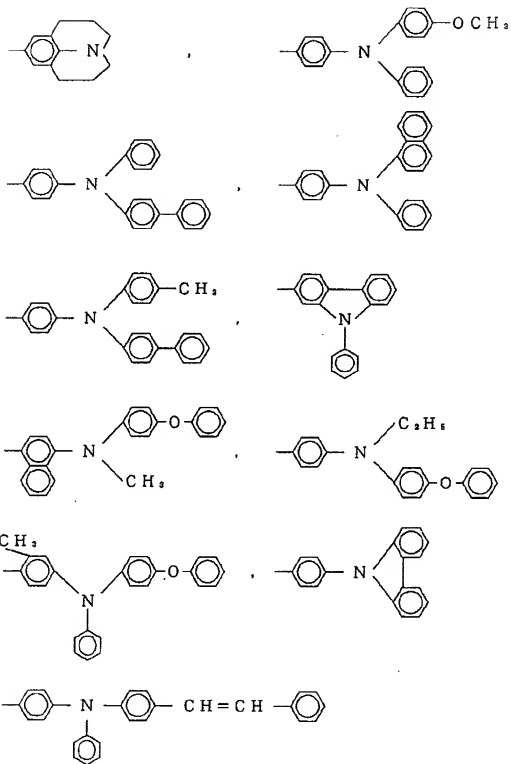
other].] It comes out and what is expressed is mentioned. As the above-mentioned electron releasing group, for example Aryloxy groups, such as a phenyloxy radical, a biphenyl oxy-radical, a naphthyloxy radical, an anthranil oxy-radical, and a terphenyl yloxy radical, Alkoxy groups, such as a methoxy group, an ethoxy radical, an isopropoxy group, a TASHARU butyloxy radical, and a pentyloxy radical, A dimethylamino radical, a diethylamino radical, a diphenylamino radical, The amino group which has hydrocarbon groups, such as a phenyl methylamino radical, a phenyl ethylamino radical, a phenylmethyl ethylamino radical, a ditolylamino radical, an ethyl phenylamino radical, a phenyl naphthyl amino group, and a phenyl biphenyl ylamino radical, is mentioned. Moreover, as an example of D1 - D12, it is [0078].

[Formula 41]



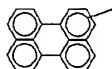
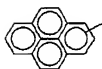
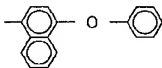
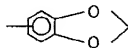
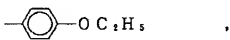
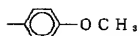
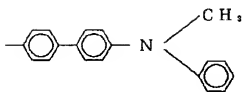
[0079]

[Formula 42]



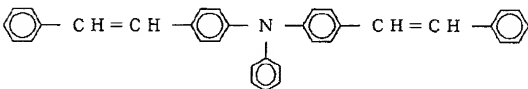
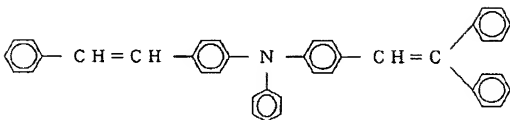
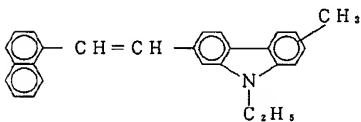
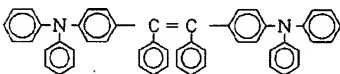
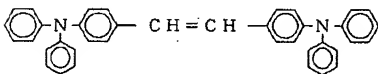
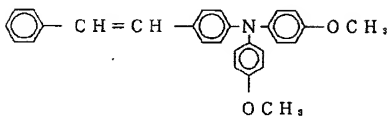
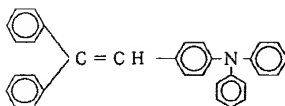
[0080]

[Formula 43]



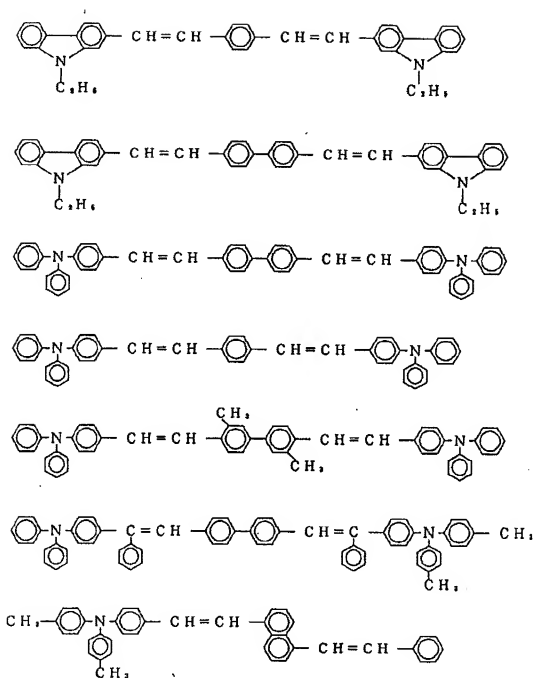
[0081]

[Formula 44]



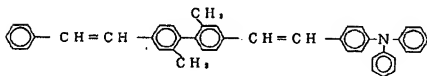
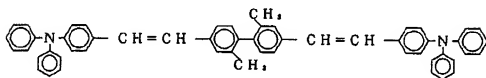
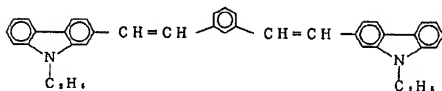
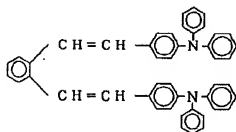
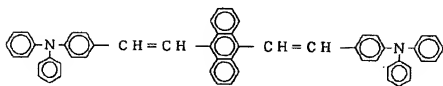
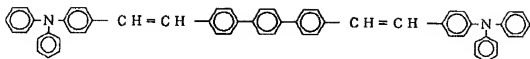
[0084]

[Formula 46]



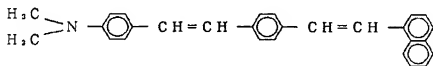
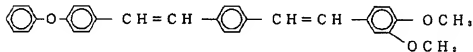
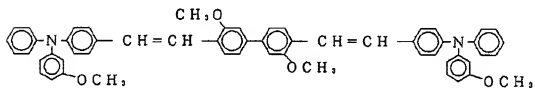
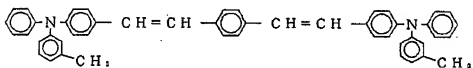
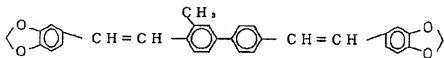
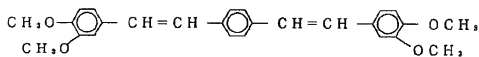
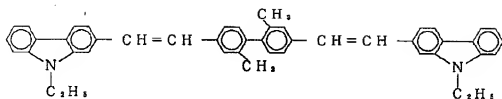
[0085]

[Formula 47]



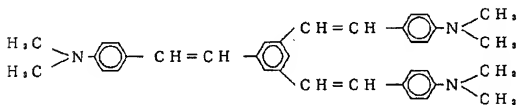
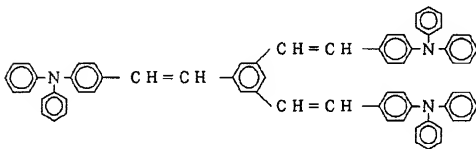
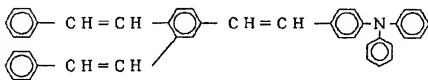
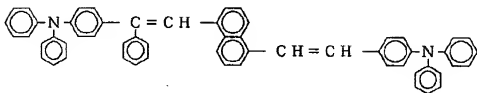
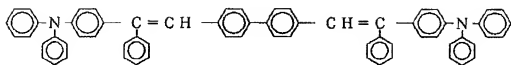
[0086]

[Formula 48]



[0087]

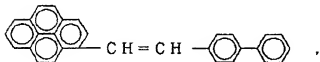
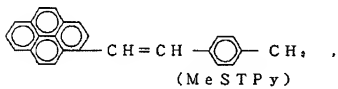
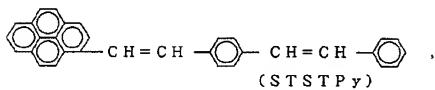
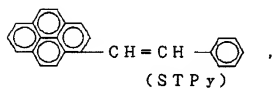
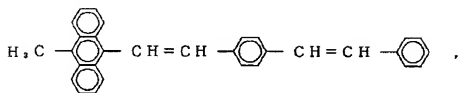
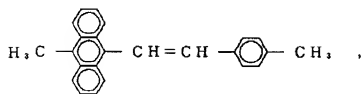
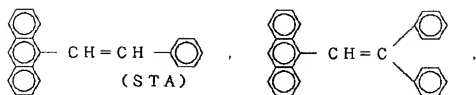
[Formula 49]



[0088]

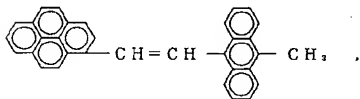
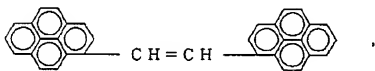
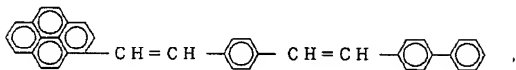
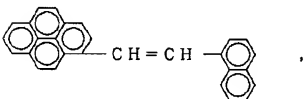
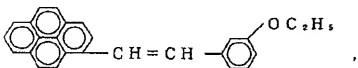
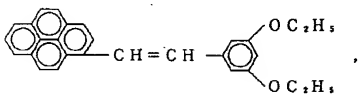
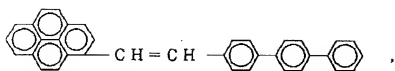
[Formula 50]

[Formula 51]



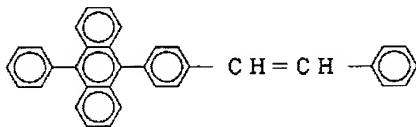
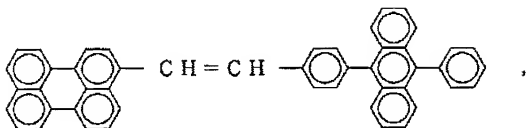
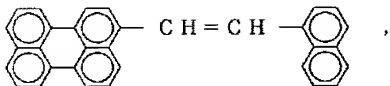
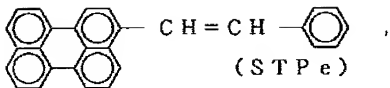
[0090]

[Formula 52]



[0091]

[Formula 53]

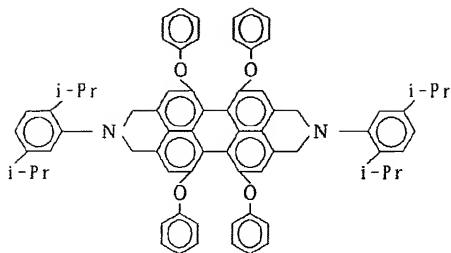


[0092] **** can be mentioned.

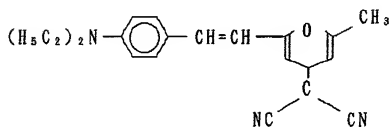
[0093] in the white organic EL device of this invention, at least, it is further alike and the thing as which the fluorescence peak wavelength in a solution condition was chosen from said first luminous layer, the second luminous layer, and other organic compound layers in 580nm or more organic compound it is [organic compound] 650nm or less and which is made to contain is required. As this

organic compound, that the peak wavelength in a solution condition should just be 580nm or more 650nm or less, although there is especially no limit, the dicyanomethylene pyran derivative used as red start laser coloring matter indicated by the Europe public presentation patent No. 0281381 official report, for example, a dicyanomethylene thiopyran derivative, a fluorescein derivative, a perylene derivative, etc. are mentioned. Specifically, it is [0094].

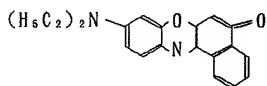
[Formula 54]



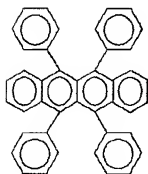
(ルモゲン F レッド)



(ジシアノメチレンピラン)



(フェノキサゾン)



(ルブレン)

[0095] **** is mentioned. It is required that these organic compounds make it contain at 0.5-5-mol % of a rate preferably to the organic compound which forms a layer 0.1-10-mol%. These 0.1 - 10% is a density range for not producing concentration quenching.

[0096] Except the configuration of a luminous layer, the configuration of the white organic EL device of this invention is not limited, and can take the component configuration of arbitration. Concretely, each configuration of the organic EL device which consists of an anode plate / hole-injection transportation layer / luminous layer / an electron injection transportation layer / cathode is explained.

[0097] As for the white organic EL device of this invention, forming on a support substrate is desirable. As for the support substrate used, what has transparency is desirable, and, generally they are glass, a transparent plastic, a quartz, etc. What uses the large (4eV or more) metal, the alloy, the electrical conductivity compounds, and such mixture of a work function as electrode material as an anode plate in the white organic EL device of this invention is used preferably. As an example of such electrode material, a transparent material or translucent ingredients with a dielectric, such as metals, such as Au, CuI, ITO and SnO₂, and ZnO, are mentioned. This anode plate can produce these pole matter by

making a thin film form by approaches, such as vacuum evaporation and sputtering. When taking out luminescence from this electrode, it is desirable to make permeability larger than 10%, and below hundreds of ohms / \square of the sheet resistance as an electrode are desirable. Although thickness is furthermore based also on an ingredient, 10nm - 1 micrometer is usually preferably chosen in 10-200nm.

[0098] What, on the other hand, uses the small (4eV or less) metal, the alloy, the electrical conductivity compounds, and such mixture of a work function as electrode material as cathode is used. As an example of such electrode material, a sodium and sodium-potassium alloy, magnesium, a lithium, magnesium / copper mixture, aluminum/(aluminum $2O_3$), an indium, a rare earth metal, etc. are mentioned. This cathode can produce such electrode material by making a thin film form by approaches, such as vacuum evaporation and sputtering. Moreover, below hundreds of ohms / \square of the sheet resistance as an electrode are desirable, and 10nm - 1 micrometer of thickness is usually preferably chosen in 50-200nm. In addition, in this EL element, transparence or a translucent thing has the drawing effectiveness of luminescence well convenient [either], in order for either this anode plate or cathode to penetrate luminescence.

[0099] The luminous layer in this EL element has the laminated structure by which consisted of the first luminous layer of the above, and the second

luminous layer, and the laminating was carried out one by one to the order of the first luminous layer and the second luminous layer from the transparent electrode or anode plate side. It is more desirable than a luminous layer with the far luminous layer especially near a cathode side that electronic transport capacity is size. Main luminescence arises in two luminous layer interfaces, the energy of luminescence here or an excitation state is used, the organic compound whose fluorescence peak in a liquid condition is 580nm or more 650nm or less emits light, and this makes white luminescence take out from a transparent electrode. When the order of a laminating of the first luminous layer and the second luminous layer becomes reverse, luminescence of the first luminous layer is absorbed by the second luminous layer, and good white is no longer obtained. Since the fluorescence peak in a liquid condition is a long wavelength component, 580nm or more organic compound it is [organic compound] 650nm or less is not absorbed by other components, and it may make what kind of layer of an organic compound layer contain it on luminescence wavelength. And the second luminous layer can choose [preferably] the thickness of a luminous layer according to a situation suitably in this range that what is necessary is just more than the thickness of the first luminous layer. the formation approach of the above-mentioned luminous layer is limited -- there is nothing -- for example, vacuum deposition, a spin coat

method, the cast method, and LB -- although it can form by thin-film-izing by well-known approaches, such as law, it is desirable that it is especially the molecule deposition film. the thing of the thin film which deposition was carried out to the molecule deposition film from the gaseous-phase condition of this compound here, and was formed, and the film solidified and formed from the solution condition or liquid phase condition of this compound -- it is -- usually -- this molecule deposition film -- LB -- with the thin film (molecule built up film) formed of law, it is classifiable with the difference of condensation structure and higher order structure, and the functional difference resulting from it.

[0100] Thus, the luminous layer in this invention offers the place of the recombination of the transportation function and the electron to which the charge (an electron and electron hole) which can pour in an electron hole from an anode plate or a hole-injection transportation layer at the time of electric-field impression, and can pour an electron into it from cathode or an electron injection transportation layer, and which impregnation-functioned and was poured in is moved by the force of electric field, and an electron hole, and has the luminescence function tie this to luminescence etc. The luminous layer of this invention is a layer which emits light in the light. In addition, an electron hole is poured in, an electron is poured in with easy, and there may be a difference in easy. Moreover, it is desirable to move either, although size may be in the

transportation function in which it is expressed with the mobility of an electron hole and an electron. Furthermore, the luminescent material used by this invention may emit light in response to supply of the excitation state by the charge recombined in other organic compound layers. Next, although the hole-injection transportation layer in the EL element of this invention is not necessarily required for this component, it is more desirable to use for improvement in the luminescence engine performance. The ingredient which conveys an electron hole to a luminous layer by lower electric field as this hole-injection transportation layer is desirable, and the mobility of an electron hole is 10^4 - 10^6 further. If it is 10^{-6} cm² / volt, and a second at least in the electric field of a volt/cm, in addition, it is desirable. For example, in photoconductive material, the thing of arbitration can be conventionally chosen and used out of what is commonly used as a charge impregnation transportation ingredient of an electron hole, or the well-known thing used for the hole-injection transportation layer of an EL element.

[0101] As a hole-injection transportation layer, for example A triazole derivative (reference, such as a U.S. Pat. No. 3,112,197 specification), An oxadiazole derivative (reference, such as a U.S. Pat. No. 3,189,447 specification), An imidazole derivative (reference, such as JP,37-16096,B), the poly aryl alkane derivative (the [United States patent] -- 3,615,402) a number specification --

this 3,820,989 a number specification -- this 3,542,544 Reference, such as a number specification, JP,45-555,B, a 51-10983 official report, JP,51-93224,A, a 55-17105 official report, a 56-4148 official report, a 55-108667 official report, a 55-156953 official report, and a 56-36656 official report, A pyrazoline derivative and a pyrazolone derivative (the [United States patent] -- 3,180,729) a number specification -- this 4,278,746 A number specification, JP,55-88064,A, a 55-88065 official report, a 49-105537 official report, a 55-51086 official report, a 56-80051 official report, a 56-88141 official report, a 57-45545 official report, a 54-112637 official report, Reference, such as a 55-74546 official report, A phenylenediamine derivative (reference, such as a U.S. Pat. No. 3,615,404 specification, JP,51-10105,B, a 46-3712 official report, a 47-25336 official report, JP,54-53435,A, a 54-110536 official report, and a 54-119925 official report), an arylamine derivative (the [United States patent] -- 3,567,450) a number specification -- this 3,180,703 a number specification -- this 3,240,597 a number specification -- this 3,658,520 a number specification -- this 4,232,103 a number specification -- this 4,175,961 a number specification -- said -- 4,012,376 A number specification, JP,49-35702,B, a 39-27577 official report, JP,55-144250,A, a 56-119132 official report, a 56-22437 official report, and West German patent 1,110,518th Reference, such as a number specification An amino permutation chalcone derivative (reference, such as a U.S. Pat. No.

3,526,501 specification), An oxazole derivative (thing given in a U.S. Pat. No. 3,257,203 specification etc.), A styryl anthracene derivative (reference, such as JP,56-46234,A), full -- me -- non -- a derivative (reference, such as JP,54-110837,A) -- a hydrazone derivative (the [United States patent] -- 3,717,462) Reference, such as a number specification, JP,54-59143,A, a 55-52063 official report, a 55-52064 official report, a 55-46760 official report, a 55-85495 official report, a 57-11350 official report, a 57-148749 official report, and JP,2-311591,A, A stilbene derivative JP,61-210363,A, a 61-228451 official report, a 61-14642 official report, a 61-72255 official report, a 62-47646 official report, a 62-36674 official report, a 62-10652 official report, and a 62-30255 official report -- Reference, such as a 60-93445 official report, a 60-94462 official report, a 60-174749 official report, and a 60-175052 official report, etc. can be mentioned. Furthermore, a silazane derivative (U.S. Pat. No. 4950950 specification), a polysilane system (JP,2-204996,A), an aniline system copolymer (JP,2-282263,A) and the conductive polymer oligomer shown on the Japanese-Patent-Application-No. No. 211399 [one to] specifications, especially thiophene oligomer, etc. are mentioned.

[0102] In this invention, although these compounds can be used as an ingredient of a hole-injection transportation layer The porphyrin compound shown below (Thing given in JP,63-2956965,A etc.) And an aromatic series tertiary-amine

compound and a styryl amine compound (the [United States patent] -- 4,127,412) A number specification, JP,53-27033,A, a 54-58445 official report, a 54-149634 official report, a 54-64299 official report, a 55-79450 official report, a 55-144250 official report, a 56-119132 official report, a 61-295558 official report, It is desirable reference, such as a 61-98353 official report and a 63-295695 official report, and to use this aromatic series tertiary-amine compound especially.

[0103] As an example of representation of this porphyrin compound Porphin; 1, 10, 15, 20-tetrapod phenyl-21H, 23H-porphin copper (II);1, 10 and 15, 20-tetrapod phenyl 21H, 23H-porphin zinc (II);5, 10 and 15, 20-tetrakis (pentafluorophenyl)-21H, and 23H-porphin; Silicon phthalocyanine oxide; Aluminum phthalocyanine chloride; A phthalocyanine ; (Non-metal) Dilithium phthalocyanine; copper tetramethyl phthalocyanine; -- copper-phthalocyanine; -- chromium phthalocyanine; -- zinc phthalocyanine; -- lead phthalocyanine; -- titanium phthalocyanine oxide; -- magnesium phthalocyanine; -- a copper octamethyl phthalocyanine etc. is mentioned. moreover, as an example of representation of this aromatic series tertiary-amine compound and a styryl amine compound N, N, N', and N' -- the - tetra-phenyl -4 and 4' - diamino phenyl;N and N' - diphenyl-N and N' - JI (3-methylphenyl) -4 and 4' - diamino biphenyl (TPDA);2 and 2-bis(4-G p-tolylamino phenyl) propane;1 -- 1-screw (4-G

p-tolylamino phenyl) cyclohexane; -- N, N, N', and N' -- the - tetra--p-tolyl -4 and 4'-diamino biphenyl;1 -- a 1-bis(4-G p-tolylamino phenyl)-4-phenylcyclohexane; screw Phenylmethane; (4-dimethylamino-2-methylphenyl) A screw (4-G p-tolylamino phenyl) phenylmethane; -- N and N' - diphenyl-N and N' - JI (4-methoxyphenyl) -4 and 4' - diamino biphenyl; -- N, N, N', and N' -- the - tetra-phenyl -4, 4'-diamino diphenyl ether;4, and 4' - screw KUODORI phenyl; N, N, and N-Tori (Diphenylamino) Amine; 4- (p-tolyl) (G p-tolylamino)-4'-[4 Styryl] stilbene; (G p-tolylamino) 4-N, N-diphenylamino-(2-diphenyl vinyl) benzene;3-methoxy-4'-N, and N-diphenylamino still benzene;N-phenyl carbazole; an aromatic series JIMECHIRI DIN system compound etc. is mentioned. Moreover, the aromatic series methyldiyne compound (refer to a Japanese-Patent-Application-No. No. 279304 [two to] specification and JP,3-231970,A) shown as an ingredient of a luminous layer can also be used as an ingredient of a hole-injection transportation layer. Furthermore, p mold-Si, p mold - Inorganic compounds (refer to international public presentation patent WO No. 05998 [90 to] official report), such as SiC, can also be used as an ingredient of a hole-injection transportation layer.

[0104] the hole-injection transportation layer in the EL element of this invention -- the above-mentioned compound -- for example, a vacuum deposition method, a spin coat method, the cast method, and LB -- a film can be produced by the thin

film-ized method law etc. is well-known, and it can form. Although there is especially no limit, 1nm - 10 micrometers of thickness as this hole-injection transportation layer are usually 5nm - 5 micrometers preferably. This hole-injection transportation layer may consist of one layer which consists of these hole-injection transportation ingredient kinds or two sorts or more, or may carry out the laminating of the hole-injection transportation layer which consists of a compound of another kind to said hole-injection transportation layer.

[0105] In the white organic EL device of this invention, In order to raise the adhesion between a luminous layer and cathode, as for this electron injection transportation layer, it is desirable to contain an adhesive high ingredient to a luminous layer and cathode. as such an adhesive high ingredient -- nitration full -- me -- non, heterocycle tetracarboxylic acid anhydrides, such as a derivative, an anthra quinodimethan derivative, a diphenyl quinone derivative, a thiopyran dioxide derivative, and a naphthalene perylene derivative, a carbodiimide, a full ORENIRIDEN methane derivative, an anthra quinodimethan derivative and an anthrone derivative, an oxadiazole derivative, other specific electron transport nature compounds, etc. can be mentioned. Moreover, the metal complex (aluminum, Zn, Li, Ga, Be, In, Mg, Cu, calcium, Sn, or Pb) of 8-hydroxyquinoline or its derivative can be mentioned. Specifically, it is a metal chelate oxy-NOIDO compound containing the chelate of an oxine (generally an eight quinolinol or

8-hydroxyquinoline). Such a compound shows the engine performance of a high level, and is easily fabricated by the thin film method.

[0106] Furthermore, if a chelation oxy-NOIDO compound is illustrated concretely Tris Aluminum; A screw (Eight quinolinol) Magnesium; A screw (Eight quinolinol) Zinc; A screw (Benzo-eight quinolinol) (2-methyl-8-quinolilato)aluminumoxide; -- tris (eight quinolinol) indium; -- tris (5-methyl-eight quinolinol) aluminum; -- eight-quinolinol lithium; -- tris (5-chloro-eight quinolinol) gallium; -- a screw Calcium; (5-chloro-eight quinolinol) There is 5 and 7-dichloro-eight-quinolinol aluminum; tris (5, 7-dibromo-8-hydroxy quinolinol) aluminum etc. In addition, that by which a metal free-lancer or metal phthalocyanines, and those ends are permuted by the alkyl group or the sulfone radical is also desirable. Furthermore, the JISUCHIRIRU pyrazine derivative mentioned above as an ingredient of a luminous layer can also be used as an ingredient of an electron injection transportation layer. Furthermore, p mold-Si, p mold - Inorganic compounds (refer to international public presentation patent WO No. 05998 [90 to] official report), such as SiC, can also be used as an ingredient of an electron injection transportation layer.

[0107] the electron injection transportation layer in the EL element of this invention -- the above-mentioned compound -- for example, a vacuum deposition method, a spin coat method, the cast method, and LB -- a film can be

produced by the thin film-ized method law etc. is well-known, and it can form. Although there is especially no limit, 1nm - 10 micrometers of thickness as this electron injection transportation layer are usually 5nm - 5 micrometers preferably. This electron injection transportation layer may consist of one layer which consists of these electron injection transportation ingredient kinds or two sorts or more, or may carry out the laminating of the electron injection transportation layer which consists of a compound of another kind to said electron injection transportation layer.

[0108]

[Example] Next, although an example explains this invention in more detail, this invention is not limited at all by these examples.

What manufactured ITO by 100nm thickness with vacuum deposition on the example 1-325mmx75mmx1.1mm glass substrate was used as the transparent electrode substrate. In isopropyl alcohol, ultrasonic cleaning was performed for 10 minutes and this substrate was immersed. This substrate was dried in desiccation nitrogen, and subsequently, SAMUKO International Lab equipment (UV-300) performed UV ozone washing, and it considered as the transparent electrode substrate. This transparent electrode substrate is installed in the substrate electrode holder of commercial vacuum evaporationo equipment (product made from Japanese Vacuum technology). N, N'-diphenyl-N,

N'-bis(3-methylphenyl)-[1 and 1'-biphenyl]-4, and 200mg (TPD) of 4'-diamines are put into the resistance heating boat made from molybdenum. Furthermore, 200mg (DPVBi) of 4 and 4'-bis(2 and 2'-diphenyl vinyl) biphenyls was put into another resistance heating boat made from molybdenum, the compound (A) shown in the 1st table was put into still more nearly another resistance heating boat made from molybdenum, and the vacuum tub was decompressed up to 1×10^{-4} Pa. Then, the boat containing TPD was heated to 215-220 degrees C, TPD was vapor-deposited on the transperence support substrate with the evaporation rate of 0.1-0.3nm/second, and the hole-injection transportation layer of 60nm of thickness was produced. The substrate temperature at this time was a room temperature.

[0109] Next, without taking this out, the boat by which DPVBi entered on this hole-injection transportation layer was heated, and 40nm laminating vacuum evaporation was carried out as the first luminous layer. The boat of a compound (A) was heated to coincidence and the first luminous layer was made to contain at a rate of (b) mol % which shows a compound (A) in the 1st table at this time. Then, the vacuum tub was returned to the atmospheric pressure, 200mg (Alq) of 8-hydroxyquinoline aluminum complexes was newly put into the resistance heating boat made from molybdenum, the compound (C) shown in the 1st table was put into still more nearly another resistance heating boat made

from molybdenum, and the vacuum tub was again decompressed up to 1×10^{-4} Pa. Subsequently, the boat containing Alq was heated and 20nm produced the film as the second luminous layer. The boat of a compound (C) was also heated to coincidence and the second luminous layer was made to contain at a rate of (d) mol % which shows a compound (C) in the 1st table at this time. Then, the vacuum tub was again returned to the atmospheric pressure, 1g of magnesium ribbons was put into the resistance heating boat made from molybdenum, 500mg of silver wires was put into the tungsten basket, and the vacuum tub was decompressed up to 1×10^{-4} Pa. Then, magnesium was carried out with the evaporation rate of 1.4nm/second, 150nm coincidence vacuum evaporation of the silver of thickness was carried out with the evaporation rate of 0.1nm/second, and it considered as the cathode which consists of a mixed metal.

[0110]

[Table 1]

第 1 表

	(A) 化合物の種類	(b) (A) の含有量 (モル%)	(C) 化合物の種類	(d) (C) の含有量 (モル%)
実施例 1	PAVB i	3. 0	ルブレン*	0. 5
実施例 2	PAVTP	3. 0	ルブレン	0. 5
実施例 3	PAVB i	3. 0	ルモルゲンF	3. 0

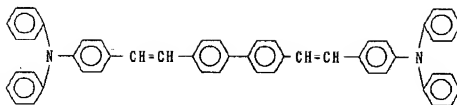
* : アルドリッチ社製

[0111] In addition, the fluorescence peak wavelength of each organic compound was DPVBi(solid-state):465nm, PAVBi(solid-state):463nm, PAVTP(solid-state):454nm, Alq(solid-state):500nm, rubrene (0.1 % of the weight solution of dimethylformamides):585nm, and F (0.1 % of the weight solution of dimethylformamides):595nm of RUMOGEN. Moreover, the structure expression of PAVBi and PAVTP is shown below.

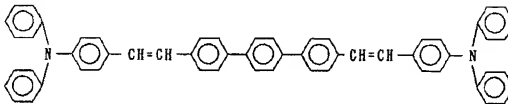
[0112]

[Formula 55]

P A V B i



P A V T P



[0113] The central value and the reduction-by-half life of the initial engine performance of this component were searched for. The result is shown in the 2nd table. In addition, the reduction-by-half life measured on condition that initial brightness:100 cd/m², a direct-current constant current drive, and drive environmental:desiccation nitrogen-gas-atmosphere mind, and was expressed with the time amount which amounted to one half of initial brightness.

[0114] The same washing process as the glass substrate with ITO of the same configuration as example 4 examples 1-3 was given, and it considered as the transparent electrode substrate, and installed in the substrate electrode holder of a vacuum tub. 200mg of TPD(s) was put into the resistance heating boat made from molybdenum, rubrene was put into still more nearly another resistance

heating boat made from molybdenum, and the vacuum tub was decompressed up to 1×10^{-4} Pa. Then, the boat containing TPD was heated, TPD was vapor-deposited on the transparence support substrate with the evaporation rate of 29-30nm/second, and the hole-injection transportation layer of 60nm of thickness was produced. the boat containing this, simultaneously rubrene -- heating -- 0.5-mol % -- it came out comparatively and the hole-injection transportation layer was made to contain rubrene The substrate temperature at this time was a room temperature. Then, it returned to the atmospheric pressure once, 200mg of DPVBi(s) was put into another resistance heating boat made from molybdenum, Compound PAVBi was put into still more nearly another boat made from molybdenum, the vacuum tub was decompressed up to 1×10^{-4} Pa, and 40nm laminating of the DPVBi was carried out as the first luminous layer on this hole-injection transportation layer. The boat containing PAVBi was heated to coincidence and it was made to contain PAVBi at three-mol % of a rate in this first luminous layer. Then, it returned to the atmospheric pressure, 200mg of Alq(s) was newly put into the resistance heating boat made from molybdenum, 1g of magnesium ribbons was put into the resistance heating boat made from molybdenum, 500mg of silver wires was further put into the tungsten basket, the vacuum tub was decompressed up to 1×10^{-4} Pa, and 40nm produced the film by making Alq into the second luminous layer. Then, magnesium was carried out

with the evaporation rate of 1.4nm/second, 150nm coincidence vacuum evaporation of the silver of thickness was carried out with the evaporation rate of 0.1nm/second, and it considered as the cathode which consists of a mixed metal. The central value and the reduction-by-half life of the initial engine performance of this component were searched for like examples 1-3. The result is shown in the 2nd table.

[0115] The same washing process as the glass substrate with ITO of the same configuration as example 5 examples 1-3 was given, and it considered as the transparent electrode substrate, and installed in the substrate electrode holder of a vacuum tub. 200mg of TPD(s) was put into the resistance heating boat made from molybdenum, 200mg of DPVBi(s) was put into still more nearly another resistance heating boat made from molybdenum, and the vacuum tub was decompressed up to 1×10^{-4} Pa. Then, the boat containing TPD was heated at 215-220 degrees C, TPD was vapor-deposited on the transparence support substrate with the evaporation rate of 0.1-0.3nm/second, and the hole-injection transportation layer of 60nm of thickness was made to produce. The substrate temperature at this time was a room temperature. Without taking this out from a vacuum tub, the boat by which DPVBi entered on the hole-injection transportation layer was heated at 245 degrees C, and 40nm laminating vacuum evaporation was carried out as the first luminous layer. Then, the vacuum tub

was returned to the atmospheric pressure, 200mg of Alq(s) was newly put into the resistance heating boat made from molybdenum, RUMOGEN F red (product made from BAFUSU) was put into still more nearly another resistance heating boat made from molybdenum, and the vacuum tub was again decompressed up to 1×10^{-4} Pa. Subsequently, the resistance heating boat made from molybdenum containing RUMOGEN F red was heated at 330 degrees C, the boat made from molybdenum containing Alq was heated to 250 degrees C, and the 40nm of the second luminous layer was produced so that the content of RUMOGEN F red might become three-mol% to Alq. Then, the vacuum tub was decompressed up to 1×10^{-4} Pa after that, magnesium was carried out with the evaporation rate of 1.4nm/second, 150nm coincidence vacuum evaporation of the silver of thickness was carried out [the vacuum tub was returned to the atmospheric pressure, 1g of magnesium was put into the resistance heating boat made from molybdenum, 500mg of silver wires was put into the basket made from a tungsten,] with the evaporation rate of 0.1nm/second, and it considered as the cathode which consists of a mixed metal. The central value and the reduction-by-half life of the initial engine performance of this component were searched for like examples 1-3. The result is shown in the 2nd table.

[0116]

[Table 2]

第 2 表 - 1

	初 期 性 能			
	電 圧 (V)	電流密度 (mA/cm ²)	発光輝度 (cd/m ²)	発光効率 (lm/w)
実施例 1	9.5	4.5	1 0 0	0.7
実施例 2	9.5	5.0	1 0 0	0.7
実施例 3	10.0	7.0	1 0 0	0.4
実施例 4	11.0	6.5	1 0 0	0.4
実施例 5	9.8	7.5	1 0 0	0.4

[0117]

[Table 3]

第 2 表 - 2

	C I B 色度座標 (x , y)	半減時間 (時間)
實施例 1	(0.245, 0.278)	1 0 0 0
實施例 2	(0.245, 0.267)	8 0 0
實施例 3	(0.300, 0.320)	6 0 0
實施例 4	(0.265, 0.278)	3 0 0
實施例 5	(0.220, 0.240)	2 0 0

[0118] As shown in the 2nd table, compared with an example 5, the whitening and quantum yield (equivalent to brightness/current density) of examples 1-4 of the luminescent color are improving, and its luminescence stability is also improving.

[0119]

[Effect of the Invention] Luminous efficiency is high, and presents white luminescence excellent in luminescence stability, and the white organic EL device of this invention is suitably used as a light emitting device in various displays.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[Drawing 1] Drawing 1 is a graph showing the definition field of the white light in a CIE chromaticity coordinate.